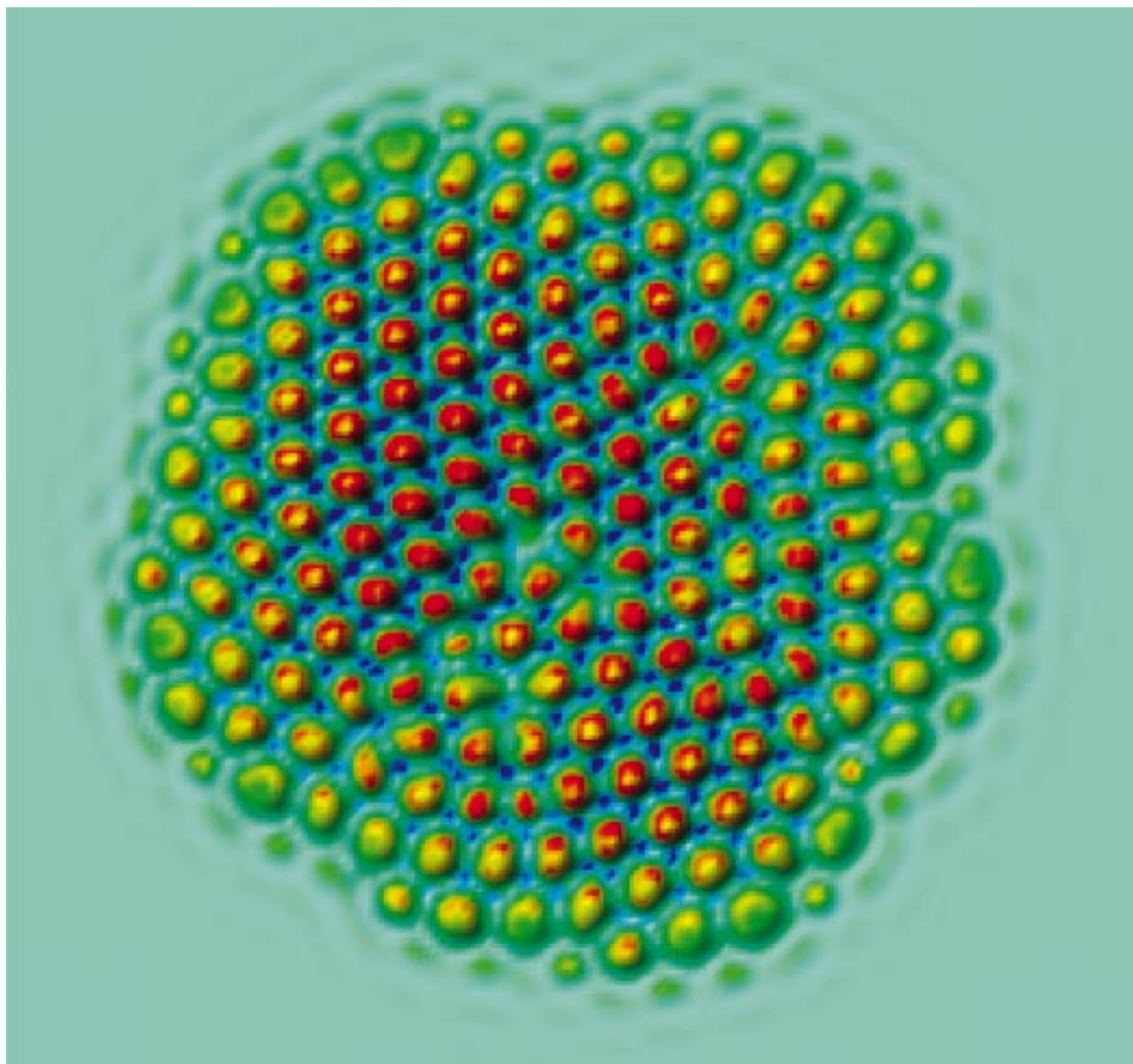




Forschungszentrum Karlsruhe
Technik und Umwelt

NACHRICHTEN



Jahrgang 32 • 3/2000

Aus dem Inhalt:

Verbrennungsvorgänge – Grundlagen und Anwendungen

**Im Inhaltsverzeichnis verwendete
Abkürzungen:**

IAI	Institut für Angewandte Informatik
IKET	Institut für Kern- und Energietechnik
ITAS	Institut für Technikfolgenabschätzung und Systemanalyse
ITC	Institut für Technische Chemie
PSA	Projekt Schadstoff- und Abfallarme Verfahren

Herausgeber:

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640 · D-76021 Karlsruhe
Telefon-Nr. (07247) 82-0

Redaktion:

Dr. Klaus Körting

Redaktionsbeirat:

Prof. Dr. Johannes Blümer
Dr. Wolfgang Breitung
Prof. Dr. Eckhard Dinjus
Dr. Jürgen Gspann
Dr. Joachim Hoffmann
Dr. Heiko Kleykamp
Dr. Rolf Krieg
Prof. Dr. Ulrich Schurath (Vorsitzender)
Dr. Karl-Friedrich Weibezahn

Grafik und Satz:

Stolz Grafisches Atelier · Karlsruhe

Layout:

Tassilo Schnitzer

Druck:

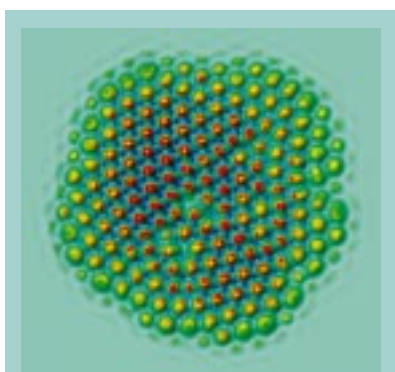
Karl Elser GmbH · Mühlacker

Nachdruck mit Genehmigung des Forschungszentrums Karlsruhe GmbH unter Nennung der Gesellschaft und des Autors gestattet. Beleg erbeten.

Die NACHRICHTEN können kostenlos über die Zentralbibliothek des Forschungszentrums bezogen werden.

Printed in the Federal Republic of
Germany

Gedruckt auf chlorfrei gebleichtem Papier



Titelbild:

Verbrennungsvorgänge sind komplexe physikalisch-chemische Prozesse. Das Titelbild zeigt ein Beispiel für die Schönheit numerisch simulierter zellulärer Flammenmuster (vgl. den Beitrag von A. G. Class und D. B. Kuhn auf Seite 211).

Inhalt / Contents

■ Verbrennung – Grundlagen und Anwendungsbeispiele 121

Combustion – Fundamentals and Applications

F. Arendt, PSA; H. Seifert, ITC

Combustion is a complex process, consisting of a mixture of interacting physical and chemical parameters. Technical tasks resulting from this interaction are spelled out, and the state of research is reported. Environmental concerns require emission abatement and acceptable properties of residues; both aspects can successfully be considered in the primary combustion process. The example of nitrogen oxide reduction demonstrates the applicability of modern process control technology to meet stringent emission standards at the source, avoiding expensive abatement equipment.

■ THERESA – Ein neues Forschungsinstrument zur Verbrennung spezieller Abfälle 125

THERESA – A New Test Facility for the Incineration of Special Waste

H. Seifert, H.-G. Dittrich, ITC; L. Malcher, PSA

The new pilot rotary kiln plant THERESA for the incineration of special waste was started up at the end of the last year. The flue gas leaving the combustion chamber is cooled down in a boiler. To meet the necessary emission limits a waste water free air pollution control system with four components is installed downstream of the boiler. The major objectives of the research programme at the new test facility are a deeper insight of the rotary kiln combustion process in order to optimise the process ecologically and economically.

■ Experimentelle Untersuchungen und numerische Simulation des Verbrennungsprozesses auf dem Rost 132

Experimental Investigations and Numerical Simulation of the Combustion Process in a Grate Furnace

H. Hunsinger, K. Jay, ITC; B. Peters, IKET

The influence of various waste mixtures on the combustion process was investigated at the test plant TAMARA. The experimental data measured above the fuel bed were used to describe drying and carbon burnout of the fuel bed. The data were also used as input parameters to model the burnout of the gas phase inside the combustion chamber by using the commercial code FLUENT. On the basis of the results design and parametric studies can be carried out in an efficient way in order to minimize pollutant formation during the combustion process.

■ Modellierung der Festbettverbrennung

139

Modelling of Packed Bed Incineration

B. Peters, L. Krebs, E. Schröder, H.-H. Frey, IKET

The objective of this study is to develop a simulation model to describe the various processes taking place in a packed bed. This includes a concept representing the entire approach to model the global process of packed bed incineration in conjunction with appropriate submodels and their results. Predictions obtained from the model support both design and operation of waste incineration plants in order to reduce primary emissions.

■ Technische Maßnahmen zur Minderung von Verbrennungsaerosolen

148

Technical Measures for Reducing Incineration Aerosols

H.-R. Paur, W. Baumann, B. Becker, H. Mätzing, H. Seifert, ITC

The emission of aerosols by the incineration of wastes or biomass may be reduced by optimization of incineration conditions and by cost effective flue gas cleaning processes. The formation mechanisms of combustion aerosols are discussed and compared to aerosol measurements at a municipal waste incinerator. At the AEOLA pilot plant the gas/particle distribution of dioxins in the presence of submicron fly ash particles is measured as function of temperature. At high relative humidities the diameter of submicron fly ash particles is increased. The wet particles are removed with high efficiency by an agglomerator system, which can be easily integrated in flue gas scrubbers.

■ Heißgasreinigung

158

Hot Gas Cleaning

H. Leibold, R. Mai, B. Zimmerlin, ITC

Hot gas cleaning involves an optimisation potential for thermal waste treatment processes. The separation of hazardous dusts upstream of the boiler drastically reduces the dust loads in the flue gas. This results in a more efficient heat utilisation and the reduction of corrosion damage. For this, a long-term stable particle filtration at temperatures above 550 to 600 °C is necessary. Due to the high thermal and chemical load caused by the flue gas, only ceramic filter systems may be applied in practice. The target parameters are derived and related to the major structural parameters of the ceramic. The current R&D activities pursued as well as approaches developed by the Research Center with regard to the clogging of the filter media, the regeneration, and the process-tailored recleaning methods are presented.

■ Stoffströme und Rückstandsmengen in der Rauchgasreinigung von Abfallverbrennungsanlagen

167

Material Flows and Solid Residue Amounts in Flue Gas Cleaning Systems of Municipal Solid Waste Incinerators

M. Achternbosch, ITAS; U. Richers, ITC

The aim of this study is a comparison of three different flue gas cleaning systems of municipal solid waste incinerators (MSWI). The main topic of the investigation is the relationship between type of flue gas cleaning system and resulting material flows including auxiliary chemicals and solid residues. This comparison will be done with the aid of material flow analysis. The elements chlorine, sulfur and cadmium are considered. In addition, investment costs will be taken into consideration. As a result of this work, a flue gas cleaning concept with a wet flue gas cleaning system equipped with fabric filter followed by a two-stage scrubber system seems to be very interesting for the construction of new plants.

■ Messung und Minderung von Quecksilberemissionen bei der thermischen Abfallbehandlung

176

Monitoring and Reduction of Mercury Emissions in Thermal Waste Treatment

H.-R. Paur, H. Büchele, Ch. Schrader, ITC; P. Bolin, Götaverken Miljö AB, Göteborg; W. Winkler, Seefelder Messtechnik, Seefeld; W. Berkhahn, Analysentechnik Salem

Mercury is emitted by the incineration of wastes as mercuric chloride (HgCl_2) and elemental mercury (Hg^0). Due to its poor solubility Hg^0 it is not retained in conventional scrubber systems and the emission limit is exceeded. For the measurement of low mercury concentrations in flue gas a novel emission monitor (Hg-CEM) for waste incinerators was developed. In the MercOx-process hydrogen peroxide (H_2O_2) is used to oxidise the metallic mercury in the fluegas. Recently the process has been upscaled to clean the flue-gas from a hazardous waste incinerator in Sweden.

■ Verbrennung von heizwertarmen Feststoffen mit Sauerstoff

182

Combustion of Low Calorific Solid Fuels with Oxygen

E. Henrich, ITC

Combustion with oxygen instead of air results in a drastic reduction of flue gas volume and plant size and a more efficient power generation. These favourable characteristics may compensate for the additional oxygen cost. Potential applications are the incineration of low calorific solid wastes or improved energy generation from poor fuels. Combustion in oxygen can also simplify or obviate the recovery of carbon dioxide from the flue gas, e.g. if large amounts are required for enhanced oil recovery or have to be disposed of to reduce global warming.

■ **Einsatz von Methoden der maschinellen Intelligenz zur Regelung von Verbrennungsvorgängen**

191

Application of Machine Intelligence Methods for Waste Incineration Control

H. B. Keller, B. Müller, IAI

Presently waste incineration is one of the most commonly used techniques for residual waste processing. It is an important step for making the waste inert and compacting it before disposal. More stricter legal regulations for the reduction of emissions lead to the necessity to improve existent process control. This paper presents several ways to improve current approaches for process control under deployment of machine intelligence methods. These methods comprise Neural Networks, Fuzzy Control and Machine Learning techniques.

■ **Das UPSWING-Verfahren – Der Schlüssel zur kostengünstigen Abfallverbrennung**
The UPSWING Process – Key to Low Cost Waste Incineration

201

J. Vehlow, H. Hunsinger, S. Kreisz, H. Seifert, ITC

The UPSWING Process is a concept for the combination of a municipal solid waste incinerator and a coal fired power plant. The dedusted and pre-cleaned off-gas of the waste combustion serves is injected into the primary air of the power plant. The coal combustion cares for the thermal degradation of waste born PCDD/F and NO_x . SO_2 from waste incineration is removed in the SO_2 scrubber of the power plant. A comparison to other co-combustion and combination scenarios indicates that this concept guarantees a minimum transfer of pollutants into the power plant and looks economically attractive.

■ **Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Strukturbildung auf Vormischflammen**

211

Experimental and Theoretical Investigations of the Pattern Formation on Premixed Flames

A. G. Class, D. B. Kuhn, IKET

In a typical burner to study premixed laminar flames a combustible mixture emerges from a porous plate. Dependent on the mixture composition and the flow rate the flame flickers or decomposes itself into a non-stationary cellular structure. The flame surface forms an array of ordered or irregular cells. The interaction of the cellular pattern with the flow is of fundamental interest for the formation of toxic combustion byproducts. The cellular patterns are investigated numerically based on a weakly nonlinear theory and experimentally using laser induced fluorescence. All the patterns are interpreted using daily-life experiences. We discuss the "cell-reproduction cascade", the "jumping ponies on the merry-go-round" and the "career of a cell".

■ **Numerische Simulation der turbulenten Verbrennung von vorgemischten Gasen in komplexen 3D-Geometrien**

222

Numerical Simulation of the Turbulent Combustion of Premixed Gases in Complex 3d Geometries

A. Kotchourko, W. Breitung, IKET

The three-dimensional code COM3D has been developed for turbulent reactive flow simulations in complex 3d geometries. The Favre averaged Navier-Stokes equations are solved together with different models for turbulence and chemical reaction. COM3D employs different flow solvers, among them a second order accurate TVD-type solver. Advanced numerical procedures are provided to facilitate the grid generation for complex 3d computational domains. COM3D was validated on experiments performed on different scales, with and without chemical reaction. The code was used for combustion analysis of different sample and application problems, ranging from small-scale single-vortex-flame interactions up to large reactor containment calculations.

■ **Numerische Simulation von Gasdetonationen in komplexen 3D-Geometrien**

243

Numerical Simulation of Gas Detonations in Complex 3d Geometries

R. Redlinger, IKET

The finite difference code DET3D developed at FZK for the numerical simulation of gaseous detonations is presented. The validation of the code by comparison with analytical solutions and a large number of different experiments is described. As an example, the calculation of pressure loads on a reactor containment due to hydrogen-air-steam detonations is given.

Verbrennung – Grundlagen und Anwendungsbeispiele

F. Arendt, PSA; H. Seifert, ITC

Feuer, also Verbrennung, ist eines der vier mythischen Grundelemente. Es symbolisiert göttliche Macht und Stärke (Engel mit dem Feuerschwert, brennender Dornbusch, Vernichtung von Sodom und Gomorrha, Pfingstflammen auf den Köpfen der christlichen Apostel). Das Fegefeuer dient der Reinigung. Die beiden religiösen Interpretationen beschreiben die heutigen Hauptanwendungen der Verbrennung: Energiewandlung als Stärke, Abfallverbrennung als Reinigung.

Mit Feuer eröffnete Prometheus den Menschen die Möglichkeiten technischer Entwicklung. Er wurde dafür bestraft, und auch heute befürchten viele, dass die Menschheit für manche technischen Entwicklungen büßen muss. Feuer drückt Emotionen und Stimmungen aus, als Feuer, als Geborgenheit am Kamin, als Angst vor Feuersbrünsten oder dem Grafitbrand von Tschernobyl.

Obwohl sich die Menschen seit altersher mit der Verbrennung befassen und ihre Erklärung durch Lavoisier mit Hilfe einer Waage vor 225 Jahren den Beginn der modernen quantitativen Chemie kennzeichnet, ist sie in vielen Einzelheiten noch unverstanden, wie auch die folgende Beobachtung beschreibt. Wenn Naturwissenschaftler und Ingenieure heute Außenstehenden Details ihrer Arbeit erläutern und begründen wollen, verwenden sie häufig die intensiven Forschungs- und Entwicklungsarbeiten an Verbrennungsmotoren als Beispiel dafür, dass technische Prozesse auch nach mehr als 100 Jahren genau-

er verstanden werden müssen und im Betrieb oder der Wirtschaftlichkeit verbessert werden können. Sie wollen damit sagen, dass sie sich mit komplexen Vorgängen und Systemen beschäftigen. In der Tat sind Verbrennungsvorgänge komplexe, also vielparametrische Prozesse. Wir müssen sie besser verstehen und kontrollieren lernen; denn Verbrennung bleibt eine unverzichtbare Technik, auch in der Abfallwirtschaft.

Worin besteht die Komplexität der Verbrennung in technischen Anlagen? Der Verbrennungsvorgang im engeren Sinne wird definiert als schnellablaufende Oxidationsreaktion von brennbaren Stoffen mit Wärmefreisetzung. Meist geschieht dies unter Aussendung sichtbarer Strahlung, die sich im Falle der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen als gelbleuchtende Flamme infolge der Rußfestkörperstrahlung darstellt. Bei rußfreien Flammen dagegen ist nur noch ein schwach blaues Leuchten der Radikalstrahlung zu sehen.

Definitionsgemäß werden zur Verbrennung Brennstoffe und Oxidationsmittel benötigt. Die Einteilung der Brennstoffe bietet gleichzeitig eine Grundstrukturierung der Feuerungstechnik. Brennstoffe können in allen drei Aggregatzuständen vorliegen: gasförmig, flüssig und fest. Entsprechend dieser Einteilung der Brennstoffe unterscheiden sich die Verbrennungsverfahren mit den jeweiligen Einrichtungen.

Grundsätzlich gibt es zwei übergeordnete Ziele der Verbren-

nung: einerseits das Bereitstellen von Wärme – zur weiteren energetischen Nutzung – und andererseits die thermische Entsorgung unerwünschter Stoffe (Abfälle). Dabei ist die Verbrennung mit gutem Ausbrand der brennbaren Stoffe und unter minimierter Schadstoffbildung durchzuführen. Die Wärmefreisetzung und -übertragung soll dem Nutzungsprozess entsprechend gesteuert werden können. Diesen grundsätzlichen Zielvorgaben dient die gesamte Verbrennungsforschung.

Daraus abgeleitete Grundprobleme der Verbrennungstechnik sind zum einen die physikalische Aufgabe der Mischung von Brennstoff und Oxidationsmittel und zum anderen die chemische Fragestellung der Beeinflussung der Oxidations- und Nebenreaktionen.

Bei der Verbrennung gasförmiger Stoffe ist durch intensive experimentelle Forschung in Verbindung mit inzwischen weit entwickelten mathematischen Modellen bereits ein hoher Wissensstand erreicht worden. Der Strömungszustand in den Gasflammen kann sowohl laminar sein, z. B. bei der Kleinflamme eines Feuerzeuges, als auch im hochturbulenten Bereich liegen, wie es bei den meisten technischen Anwendungen der Fall ist. Das Mischen von Brennstoff und Oxidationsmittel kann bereits vor der Zündung stattfinden, z.B. beim Bunsenbrenner, meistens jedoch wird die Luft im Flammenbereich selbst durch den Brennstoffstrahl eingesaugt. Solche Diffusionsflammen können in sehr unterschiedlichen Größen ausgelegt

werden. Die größten technischen Ausführungen findet man bei Fackelflammen mit Flammenlängen von weit über hundert Metern.

Sollen flüssige Stoffe verbrannt werden, muss der flüssige Brennstoff zunächst zerstäubt werden, um die Verdampfung zu beschleunigen. Die eigentliche Verbrennung läuft dann in der Gasphase ab.

Bei festen Brennstoffen ist der Verbrennung zunächst eine Trocknungsphase, dann die Entgasung (Pyrolyse) von flüchtigen brennbaren Bestandteilen und schließlich die Vergasung des festen Kohlenstoffs vorgeschaltet. Neben homogenen Verbrennungsreaktionen finden bei der Feststoffverbrennung auch heterogene Reaktionen statt, bei denen noch erheblicher Forschungsbedarf besteht. Neben der Kohleverbrennung in Kraftwerken ist das Hauptanwendungsfeld der Feststoffverbrennung die Verbrennung von Abfällen, die sowohl aus dem Siedlungsbereich als auch aus der Industrie kommen können.

Fehler und Unzugänglichkeiten der Feststoffverbrennung führen zu unvollständiger Verbrennung, die Einbußen im Wirkungsgrad (Energiewandlung) mit sich bringt. Unter stofflichen Gesichtspunkten sind die Produkte der unvollständigen Verbrennung mit Umweltproblemen verbunden, bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen etwa durch die Bildung von Ruß, Kohlenmonoxid und potenziell toxischen Zwischenprodukten. Außerdem be-

steht die Gefahr, dass feste Reststoffe wie Aschen und Stäube unzulässig hohe Konzentrationen an unverbrannten Kohlenwasserstoffen enthalten.

Auch Folgeprozesse der Verbrennung zur Energiewandlung müssen beachtet werden. Außer bei der direkten Nutzung der Verbrennungsgase in Gasturbinen ist die Übertragung der erzeugten Wärme auf einen geeigneten Wärmeträger wie Dampf erforderlich. Das geschieht in Kesseln, deren wesentliche Komponenten Rohrbündel sind. Die Stäube der heißen Rauchgase scheiden sich auf den Wärmeübertragungsflächen ab und behindern den Wärmeübergang. Andererseits bilden sie eine Schutzschicht gegen die Korrosion der Metallflächen durch aggressive Spurenstoffe im Gas. Die Lösung liegt entweder in einer Verbrennungsführung, die den Staubaustrag durch geringe Strömungsgeschwindigkeit vermindert, in der Entwicklung von wirtschaftlich arbeitenden, d. h. abreinigbaren Filtern für Betriebstemperaturen oberhalb 800°C oder in der periodischen Kesselreinigung. Die Art des Brennstoffs und wirtschaftliche Überlegungen bestimmen die Wahl der geeigneten Option.

Im allgemeinen wird mit Luft verbrannt, die kostenlos zur Verfügung steht und bei den meisten Brennstoffen die Einstellung einer Temperatur ermöglicht, bei der die Oxidationsprozesse hinreichend schnell und vollständig ablaufen. Die zunehmend preiswerte Verfügbarkeit von hochkonzentriertem, „technischem“

Sauerstoff und die Größe und Kosten von nachgeschalteten Rauchgasreinigungskomponenten, die aus Umweltschutzgründen gefordert werden (Staub, SO₂ etc.), erlauben aber Überlegungen, den Luftstickstoff als Trägergas zu ersetzen und/oder die Sauerstoffkonzentration zu verändern. So kann beispielsweise der Stickstoff durch CO₂ ersetzt werden, indem der größere Teil des Rauchgases nach einer Sauerstoffanreicherung in den Brennraum zurückgeführt wird. Die gegenüber Stickstoff höhere Wärmekapazität von CO₂ eröffnet neue Möglichkeiten zur Änderung der Parameter Temperatur und Verhältnis Sauerstoff zu Trägergas; die Bildung von thermischem Stickoxid wird reduziert. Für die Rauchgasreinigung ergeben sich drastisch reduzierte Volumenströme mit höherer Schadstoffkonzentration, die neue Reinigungstechniken ermöglichen, bis hin zur fast vollständigen Kondensation von Wasserdampf und der Gewinnung von CO₂ für technische Anwendungen. Mit Sauerstoffanreicherung lässt sich auch der Bereich von Eingangsstoffen für die Verbrennung erweitern, etwa auf Abfälle mit sehr hoher Feuchte und geringem Heizwert oder auf Reststoffe mit hohem Inertanteil wie bei Altdeponien oder der Bodenreinigung. Schließlich lässt sich im Durchflussbetrieb die Sauerstoffkonzentration auch so weit vermindern, dass die Verbrennung in andere thermische Prozesse wie Pyrolyse und Vergasung übergeht. Insgesamt enthält die thermische Stoffumwandlung im Gassystem O₂/N₂/H₂O/CO₂ eine Fülle von Optionen und For-

schungsaufgaben für die Energie- und Umwelttechnik. Beispielsweise wurde vor ca. 20 Jahren an der Universität Karlsruhe der weltweit beachtete Nachweis erbracht, dass sich in überkritischem Wasser Flammen bilden, wenn Methan und Oxidationsmittel zugegeben werden.

Aus Korrosions- und Umweltschutzgründen spielen Schadstoffe in Brennstoffen und als Verbrennungsprodukte eine Rolle, die in den letzten Jahrzehnten zugenommen hat. In Kraftwerken werden Staub, SO_2 und Stickoxide im allgemeinen in nachgeschalteten Komponenten abgeschieden; für die Stickoxide werden auch brennraumnahe Reduktionsprozesse (SNCR) verwendet. In Abfallverbrennungsanlagen ist das Problem der Schadstoffe mindestens gleichbedeutend mit dem des energetischen Wirkungsgrades, wenn nicht wichtiger. Chlor und (Schwer-)Metalle müssen zusätzlich zurückgehalten werden, und der Gesamtprozess wird durch diese Aufgabe wesentlich bestimmt. Die Erkenntnis, dass Dioxinbildung vor allem durch de-novo-Synthese im Rauchgasreinigungs- und Energieverwertungsteil einer Abfallverbrennungsanlage stattfindet und von der Zusammensetzung und der Temperatur der dort verfügbaren Stoffe abhängt, erfordert die Betrachtung einer Verbrennungsanlage als Gesamtsystem. Es ist eine große wissenschaftliche Herausforderung, die Verbrennung eines so heterogenen Brennstoffs wie Siedlungsabfall nach spurenchemischen Kriterien zu optimieren.

Auslegung und Betrieb von technischen Abfallverbrennungsanlagen erfordern unterschiedliche Strategien, die im HGF-Strategiefondsprojekt „Stickoxidminderung“ parallel verfolgt werden. Die Leitung des Projektes liegt beim Bereich Thermische Abfallbehandlung des Instituts für Technische Chemie im Forschungszentrum Karlsruhe. Partner sind weitere Institute des Zentrums, der GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit – und des Deutschen Zentrums für Luft und Raumfahrt (DLR), Institute der Universitäten Stuttgart und Karlsruhe, das Umweltinstitut CUTEC in Clausthal-Zellerfeld, sowie drei Industriefirmen. Ziel der Arbeiten mit einem Personaleinsatz von mehr als 50 Personenjahren und einer Dauer von drei Jahren ist es, die Konzentration von Stickoxiden am Ende der Verbrennung innerhalb des gesetzlich vorgeschriebenen Grenzwertes von $200 \text{ mg NO}_x/\text{Nm}^3$ zu halten. Dadurch lassen sich nachgeschaltete Reinigungsstufen für Stickoxide einsparen. Das Ziel entspricht damit der aktuellen Aufgabe, die Kosten für den Umweltschutz unter Einhaltung der strengen Emissionsgrenzwerte zu senken.

Für die Auslegung einer technischen Anlage sind detaillierte Kenntnisse der Prozesse, für die sie errichtet wird, erforderlich. Im Fall der Stickoxidminderung bedeutet das die Identifikation von Verbindungen und Radikalen, die zur Stickstoffbilanz beitragen und bei den Temperaturen der Abfallverbrennung vor allem aus dem Brennstoffstickstoff stammen. Moderne Messtechniken mit und

ohne Probenahme müssen für diese Aufgabe weiterentwickelt, angepasst und eingesetzt werden, ebenso wie für die Bestimmung der Temperaturverteilung im Brennraum. Die Messergebnisse werden in reaktionschemische Modelle für die Gasphase eingebracht. Andere Modelle werden für die Beschreibung des Brennstofftransports und der sich fortschreitend ändernden Brennstoffzusammensetzung („Abbrand“) benötigt, um die Quellen der wichtigen Reaktionspartner zu beschreiben. Solche Modelle für die Feststoffverbrennung sind noch nicht zufriedenstellend. Reaktionskinetik und Feststofftransport werden schließlich mit Optionen der Luftzufuhr verknüpft, über die sich die Temperaturverteilung und das oxidative oder reduktive chemische Milieu im Brennraum einstellen lässt. Damit werden Kenntnisse über die geeignete Gestaltung von Brennräumen sowie über Luft- und Brennstoffführung gewonnen. Insgesamt handelt es sich dabei um ein deterministisches Vorgehen, basierend auf elementaren Reaktionen und Transportvorgängen.

Für den Betrieb einer so ausgelegten Anlage kann ein anderer Ansatz gewählt werden, wenn aufwändige Messungen und Berechnungen aus Zeitgründen online nicht durchgeführt werden können. Einige Messdaten (z. B. Temperatur, Konzentrationen von O_2 und CO , ein Infrarotbild des Brennvorganges) werden mit modernen, lernenden Verfahren der künstlichen Intelligenz verarbeitet und mit Emissions- und anderen Betriebsparametern verknüpft.

Auf diese Weise lassen sich relevante Signale finden, die zur weiteren Verbesserung der Anlagensteuerung verwendet werden können. Insgesamt handelt es sich hier um eine empirisch-heuristische Strategie, die neben den physikalisch-chemischen Modellen zusätzlich eingesetzt werden kann und sich vor allem bei wechselnden Brennstoffeigenschaften empfiehlt.

Die geschilderte Doppelstrategie zur Prozessbeherrschung mit Hilfe deterministischer Modelle und künstlicher Intelligenz, am Beispiel der Stickoxide in Rostfeuerungen entwickelt, soll später auch auf andere primärseitige Minderungsmaßnahmen in Abfallverbrennungsanlagen angewendet werden, etwa auf die Vermeidung von organischen Substanzen, die zur Dioxinbildung beitragen. Darüber hinaus ist dieses Vorgehen auch für andere technische Prozesse geeignet und lässt erwarten, dass das Potenzial moderner Verfahren der Simulation, Messtechnik, Messdatenverarbeitung und Regelung für den produktionsintegrierten Umweltschutz durch Prozesssteuerung weiter erschlossen werden kann. Dies ist ein wichtiger Schritt auf dem Wege zu einer nachhaltigen, d. h. ressourcenschonenden und umweltverträglichen Technik.

In den letzten Jahren wurde die Abfallverbrennung aus zwei Gründen kritisch hinterfragt: einerseits wurden Umweltverschmutzungen aus Emissionen in die Atmosphäre und aus Reststoffen befürchtet; zum anderen wurden zu hohe Entsorgungskosten bemängelt. Mit den Grenzwerten der 17. Verordnung zum Bundesimmissionsschutzgesetz (17. BImSchV) und ihrer Umsetzung in Großanlagen sind die ökologischen Bedenken weitgehend ausgeräumt. Zu dieser veränderten Einstellung der Öffentlichkeit haben die Ergebnisse des Forschungszentrums Karlsruhe beigetragen, insbesondere durch die Aufklärung und Verminderung der Dioxinbildung, die Verfahren zur Senkung der Quecksilber- und anderer Metallemissionen und die Beiträge zur Verwertung und Bewertung von Reststoffen. Es geht nun darum, die durch Wettbewerb in den letzten Jahren bereits gesunkenen Kosten durch technische Fortschritte und bei Wahrung des erreichten ökologischen Niveaus weiter zu senken.

Mit Inkrafttreten des Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetzes 1996 und der Technischen Anleitung Siedlungsabfall begann eine 10-jährige Frist, nach deren Ablauf die Deponierung von organisch belasteten Abfällen ohne Vorbehandlung verboten wird. Depo-

niebetreiber sind daher bestrebt, die verfügbaren Volumina bis 2005 weitgehend zu verfüllen. Gleichzeitig wurde in begrenztem Umfang die Mitverbrennung von Abfällen in Kraftwerken und Industriefeuerungen erlaubt. Beide Vorgänge und zu hohe Kosten der Verbrennung führten dazu, dass die Abfallanlieferung an manche Verbrennungsanlagen zurückging. Allerdings ist ab 2005 mit einer Umkehr des Trends und einer Erhöhung des Verbrennungsanteils am Restmüll der Siedlungsabfälle zu rechnen, der heute in Deutschland bei etwa 30 % liegt.

THERESA – Ein neues Forschungsinstrument zur Verbrennung spezieller Abfälle

H. Seifert, H.-G. Dittrich, ITC; L. Malcher, PSA

Eine halbertechnische Versuchsanlage zur thermischen Entsorgung spezieller Abfälle (THERESA) ist nach sehr kurzer Bauzeit von nur anderthalb Jahren zum Ende des letzten Jahres in Betrieb genommen worden. Es handelt sich um eine Drehrohrofenanlage mit Wärmenutzung und kostenoptimaler einfacher Rauchgasreinigung, die dennoch die scharfen Grenzwerte der 17. BImSchV einhalten wird.

Mit dieser nach neuesten Erkenntnissen konzipierten Anlage wird das experimentelle Instrumentarium zur thermischen Abfallbehandlung im Forschungszentrum Karlsruhe in idealer Weise ergänzt. Wurden bisher vor allem Fragestellungen zur Hausmüllverbrennung an der Versuchsanlage TAMARA (Testanlage zur Müllverbrennung, Abgasreinigung, Rückstandsverwertung, Abwasserbehandlung) untersucht, können jetzt auch andere Abfälle unterschiedlicher Konsistenz (z.B. fest, flüssig oder pastös) und variabler Stückigkeit (z.B. auch Gebinde) in das Untersuchungsspektrum aufgenommen werden.

Als wesentliche Zielsetzung für das anstehende THERESA F+E-Programm sollen durch ein besseres Verständnis des Drehrohrofenverbrennungsprozesses die Prozessketten unter sowohl ökologischen als auch ökonomischen Vorgaben optimiert werden. Dazu wurden neben dem Forschungsverbund innerhalb der Programme des Forschungszentrums auch Kooperationen mit verschiedenen Universitäten und Industriepartnern gestartet.

Sicherlich wird unter dem Eindruck häufig berichteter Auslastungsprobleme der Abfallverbrennungsanlagen „mangels Abfall“ die Frage nach der Sinnhaftigkeit weiterer F+E-Arbeit und damit weiterer Pilotanlagen wie z.B. der THERESA gestellt. Doch genau an den Ursachen dieser Fehlentwicklungen setzt die aktuelle Zielsetzung für die Pilot-Anlagen an.

Einerseits ist der durch verstärktes Recycling bedingte Rückgang des Abfallaufkommens deutlich schwächer, als dass damit die Auslastungsprobleme der Verbrennungsanlagen erklärt werden könnten. So ist z.B. in Baden-Württemberg das Restmüllaufkommen beim Hausmüll in den letzten beiden Jahren sogar nahezu konstant geblieben. Andererseits haben gesetzliche Regelwerke wie das Kreislaufwirtschaftsgesetz und die „Technische Anleitung Siedlungsabfall“ entgegen ihrer ursprünglichen

Absicht eine beschleunigte Verfüllung von Deponien mit Restkapazitäten vor dem Stichjahr 2005, nach dem unbehandelte Abfälle nicht mehr deponiert werden dürfen, ausgelöst. Zudem werden viele thermisch verwertbare Abfallfraktionen aus Kostengründen über den Weg des Ersatzbrennstoffs in andere Prozesse eingeschleust und damit den Abfallverbrennungsanlagen mit den meist besseren Umweltstandards entzogen.

Von den hohen, in der 17. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (BImSchV) vorgegebenen Umweltzielen wird selbstverständlich auch mit der neuen Anlage nicht abgerückt, aber als Hauptentwicklungsziel sollen durch technische und verfahrenstechnische Entwicklungen die spezifischen Kosten für die Abfallverbrennung in Drehrohrofenanlagen gesenkt werden. Wie in Abb. 1 schematisch dargestellt, ist vorgesehen, durch For-

Leitgedanke: Technologie kostengünstiger gestalten bei Einhaltung vorgegebener Umweltziele

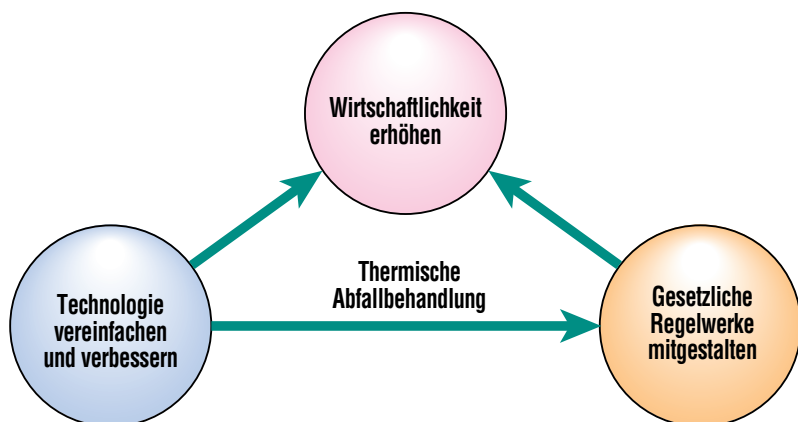


Abb. 1: Zielsetzung der thermischen Abfallbehandlung im Spannungsfeld zwischen Forschung, Gesetzgebung und Ökonomie.

schung und Entwicklung die Technologie der Sonderabfallverbrennung vor allem zu vereinfachen und ihre Effizienz zu steigern. Dadurch wird unmittelbar die Wirtschaftlichkeit des Verfah-

rens erhöht. Aber auch indirekt kann durch deregulierende Mitgestaltung bei überbestimmten Regelwerken eine Kostenreduzierung erreicht werden. Insgesamt wird somit die Wirtschaft-

lichkeit der thermischen Abfallbehandlung verbessert und die Konkurrenzfähigkeit des ökologisch besten Entsorgungswegs wieder hergestellt.

Verfahrenskonzept

Die für THERESA vorgesehenen Abfallstoffe haben ein außerordentlich breites Spektrum an physikalischen und chemischen Eigenschaften. Sie reichen von gasförmigen über pastöse und flüssige bis hin zu festen Stoffen. Das Spektrum der Heizwerte überdeckt dabei den Bereich von hochkalorigen Stoffen wie z. B. Heizöl über Inertstoffe wie Glas oder Sand, die keinen Heizwert haben, hin zu Stoffen mit negativem Heizwert wie z. B. verunreinigte Abwässer.

Für dieses breite Stoffspektrum wurde eine Kombination aus Drehrohrofen und Nachbrennkammer als ein erprobtes und anwendungsreifes Verfahrenskonzept ausgewählt. Dieses gestattet sowohl den Einsatz von aggressiven Stoffen mit hohem Chlor- und Schwefelgehalt als auch die Behandlung bei hohen Temperaturen bis zu 1300 °C.

Verfahrensbeschreibung

Das Verfahrensschema ist in Abb. 2a und b dargestellt.

Feuerung

Aus dem Lager werden die verschiedenen Einsatzstoffe über Beschickungseinrichtungen in das Drehrohr und die Nachbrennkammer gefördert. Das Drehrohr besitzt an der Stirnseite folgende Beschickungseinrichtungen:

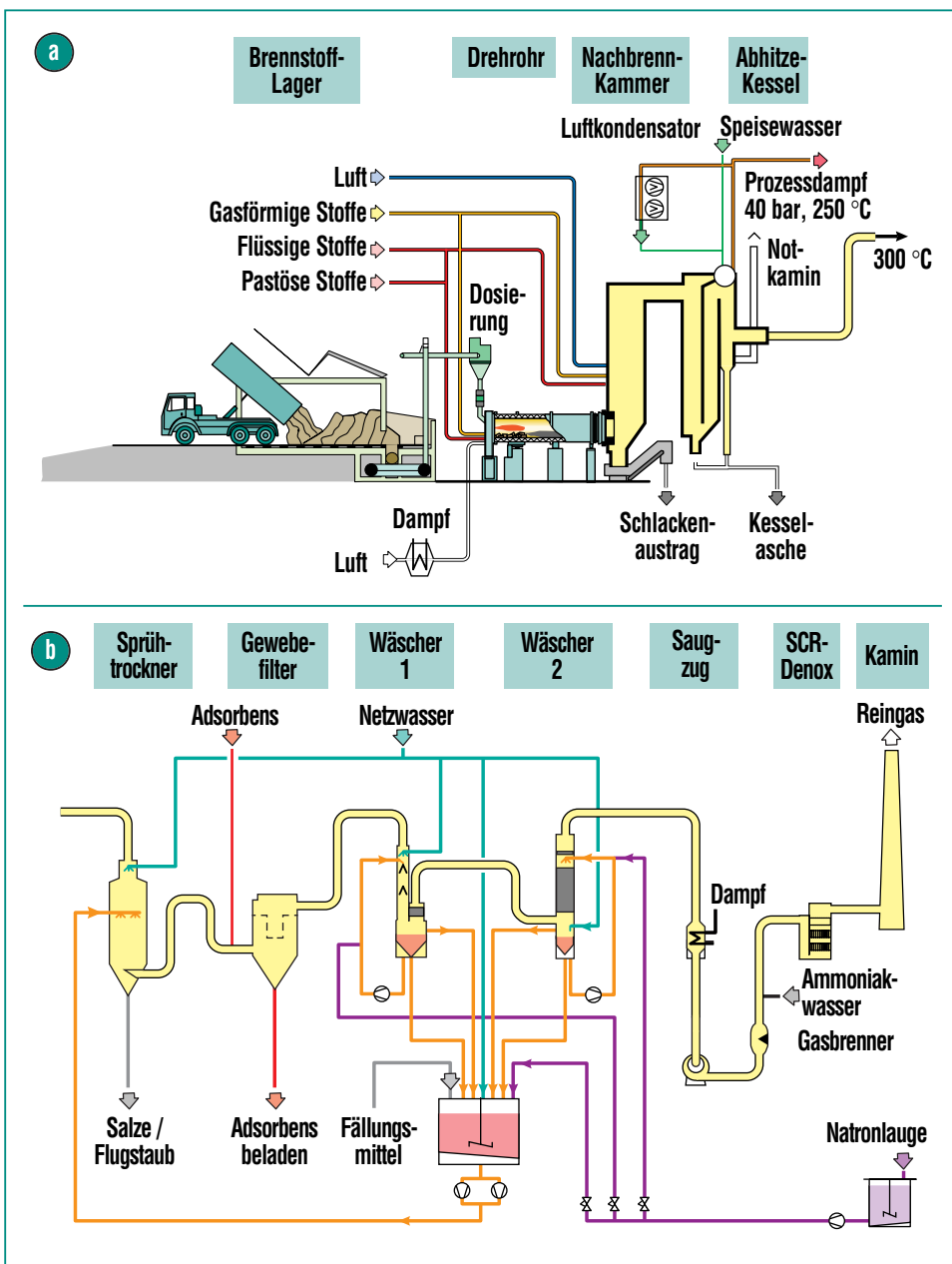


Abb. 2: a) THERESA – Verfahrenfließbild „Heißer Teil“ mit den Hauptkomponenten Drehrohrofen, Nachbrennkammer und Abhitzekegel. b) THERESA – Verfahrenfließbild „Rauchgasreinigungsanlage“ mit Sprühtrockner, Gewebefilter, 2-stufiger Nasswäscher und SCR-Denox-Katalysator.

- gekühlte Schurre für Schüttgüter bis 40 mm maximaler Korngröße
- Kombinationsbrenner für Gase und Flüssigkeiten
- Zerstäuberlanze für pastöse Stoffe und Flüssigkeiten
- Luftdüse für Verbrennungsluft
- Schleuse für die Handaufgabe von Gebinden mit maximal 5 Liter Inhalt

Durch die Drehbewegung und die Schrägstellung des Drehrohres werden die festen und pastösen Stoffe langsam weiter bewegt und längs ihres Weges nach und nach entgast und verbrannt, bis sie schließlich am Ende als Schlacke in den Nassentschlacker austreten. Je nach Temperatur im Drehrohr kann die Schlacke entweder flüssig oder fest ausgetragen werden.

Die Verweilzeit der festen Abfälle im Drehrohr kann sowohl über eine Veränderung des Neigungswinkels als auch über eine veränderbare Drehzahl beeinflusst werden.

Aus dem Drehrohr werden die Verbrennungsgase nach oben in die Nachbrennkammer geführt. Diese ist im unteren Teil mit folgenden Beschickungseinrichtungen versehen:

- 2 Kombinationsbrenner für Gase und Flüssigkeiten
- Luftdüse für Verbrennungsluft

Die Kombinationsbrenner sind zueinander antiparallel versetzt angeordnet. Dadurch wird in der Nachbrennkammer eine Verwirbelung und damit eine bessere

Durchmischung der Verbrennungsgase erzielt.

Bis auf die Gebindeaufgabe werden alle Stoffe dem Drehrohr und der Nachbrennkammer kontinuierlich zugeführt. Alle Teilströme werden gemessen und registriert, um eine möglichst genaue Bilanzierung vornehmen zu können.

Abhitzekessel

Die heißen ausgebrannten Abgase gelangen aus der Nachbrennkammer in den Abhitzekessel, wo sie auf etwa 300 °C abgekühlt werden. Im Kessel wird Sattendampf von 40 bar und 250°C erzeugt. Ein Teil dieses Dampfes wird in der Anlage selbst für Heizzwecke verwendet. Der größere Teil wird über Dach in einem Luftkondensator kondensiert und als Speisewasser zurückgeführt.

Abgasreinigung

Zunächst gelangen die Abgase in einen Sprühtrockner. Dort wird Wasser in das Abgas eingesprüht und vollständig verdampft. Die Inhaltsstoffe des Wassers bleiben als feste Partikel übrig und werden teils am unteren Ende des Sprühtrockners ausgetragen und teils mit dem Abgas mitgerissen. Durch die Verdampfung kühlt sich das Rauchgas ab und wird durch Regelung der eingesprühten Wassermenge konstant auf 180 °C gehalten.

Nach dem sogenannten Flugstromverfahren wird in die nachfolgende Rohrleitung eine kleine Menge pulverförmiges Adsorbens, das aus einem Gemisch von Kalk und Aktivkoks besteht, in das Rauchgas eingeblasen. In

dem nachfolgenden Gewebefilter wird das Adsorbens zusammen mit den übrigen Stäuben, die das Abgas mitführt, auf der Oberfläche der Filterschläuche abgeschieden. Dioxine, Furane und andere organische Bestandteile sowie ein Großteil des Quecksilbers werden dort aus dem Rauchgas entfernt und an das Adsorbens gebunden, welches von Zeit zu Zeit zusammen mit den übrigen Stäuben von den Oberflächen abgereinigt und unten aus dem Gewebefilter ausgetragen wird.

Die Entfernung der organischen Bestandteile bereits am vorderen Ende der Abgasreinigungsstrecke hat den Vorteil, dass der Rest der Anlage sauber bleibt und sich somit keine organischen Stoffe in die Kunststoffwände z.B. der Wäscher einlagern können.

In der sich anschließenden zweistufigen Nasswäsche werden gasförmige Schadstoffe aus dem Abgas entfernt. Die erste Stufe wird sauer betrieben. Hier werden HCl, HF und das restliche Quecksilber ausgewaschen. In der zweiten neutral eingestellten Stufe wird SO₂ entfernt. Die pH-Werte in beiden Wäschern werden durch geregelte Zugabe von Natronlauge eingestellt. Die Salzgehalte der Waschwässer werden durch geregeltes Ausschleusen von Waschwasser und Nachfüllen von Frischwasser konstant gehalten.

Die Abwässer aus beiden Wäschern werden in einem Sammelbehälter neutralisiert. Durch Zugabe eines Fällungsmittels wird das gelöste Quecksilber gebunden. Danach gelangt das aufbe-

reitere Abwasser zum eingangs erwähnten Sprühtrockner, wo es eingedampft wird.

Das Abgas verlässt die Nasswäsche mit etwa 70°C und wird mit Hilfe von Prozessdampf und eines Gasbrenners auf 320 °C aufgeheizt. Bei dieser Temperatur wird das Rauchgas im nachgeschalteten Katalysator unter Zugabe von Ammoniakwasser von den Stickoxiden gereinigt.

Planung und Errichtung der THERESA

Der Erteilung der immissionschutzrechtlichen Genehmigung (nach 17. BImSchV) für 2000 Stunden Betriebszeit pro Jahr inklusive Bau- und abwasserrechtlicher Genehmigung am 22.12.96 durch das Regierungs-

präsidium Karlsruhe folgte der Versand der Generalunternehmer-Ausschreibungsunterlagen im Januar 1997. Die von der Bundesregierung am 31.10.97 beschlossene Haushaltssperre reduzierte die finanzielle Basis für das Projekt deutlich: Ein alternatives Abwicklungskonzept musste entwickelt werden, das den sogenannten „Heißen Teil“ der Versuchsanlage nach wie vor beim Generalunternehmer sah, während die Rauchgasreinigungsanlage, das Lagergebäude und die Lager für Feststoffe und Flüssigkeiten vom Forschungszentrum in eigener Regie zu beauftragen waren.

Die technischen Eckdaten für den „Heißen Teil“ – hierzu gehören der Drehrohrofen, die Nachbrennkammer, der Abhitzekeessel, die entsprechenden Bedienungsbühnen und das Prozessleitsystem – blieben hierbei völlig unverändert; die Lager sowie die abwasserfreie Rauchgasreinigungsanlage wurden deutlich reduziert.

Der „Heiße Teil“ wurde bei LURGI Umwelt, Frankfurt als Generalunternehmer in Auftrag gegeben, die Gewerke Rauchgasreinigungsanlage (TREMA, Bayreuth), das Lager für feste Stoffe (Technip Germany, Frankfurt) und das Lager für Flüssigkeiten (OAS, Bremen; Winckler, Schwaig) wurden vom Forschungszentrum direkt vergeben; dies gilt auch für die Massiv- und Stahlbauarbeiten des Lagergebäudes. Ein Projektteam des Forschungszentrums koordiniert die Gesamtabwicklung. Die direkt beteiligten Institutionen sind: BTI, EVM, die ehemalige HIT, HVT, IAI, ITC und PSA.

Einige Eckdaten, welche auch die Größe der Versuchsanlage charakterisieren, sind nachfolgend dargestellt:

THERESA-Eckdaten

Drehrohrofen

Thermische Leistung:	1,5 MW
Rauchgasaustritts-temperatur	800-1200°C
Feststoff-durchsatz:	250 kg/h bzw. 1 m³/h
Länge:	8,4 m
Außendurchmesser:	2 m
Neigungsverstellung:	0,5-3°
Drehzahlbereich:	0,1-3 U/min

Nachbrennkammer

Thermische Leistung:	0,5-1,5 MW
Rauchgasaustritts-temperatur:	max. 1300°C
Rauchgas-Verweilzeit:	2,5 sec bei 1200°C (O ₂ = 6%)
Rauchgas-Volumenstrom:	4000 (max. 5000) Nm³/h
Höhe:	ca. 15 m

Abhitzekeessel

Thermische Leistung:	2,0 (max. 2,5 kurz.) MW
Sattdampf:	40 bar, 250°C für Prozessnutzung
Rauchgas-austritts-temperatur:	norm. 300°C (Notkamin ≤ 500 °C)
Überschussdampf-Entspannung über Luftkondensator	
Höhe:	ca. 16,5 m



Abb. 3: THERESA – Aufbau Drehrohrofen (rechts) und Nachbrennkammer (Stand März 1999).

Zwischen März und September 1998 wurden die verschiedenen Aufträge erteilt. Im Winter noch wurde mit der Errichtung des Lagergebäudes begonnen, die Montage der Verfahrenstechnik begann im Februar 1999 mit der Anlieferung des Drehrohrofens und der Nachbrennkammer (siehe Abb. 3). Spektakulärste Aktion war die Anlieferung und die Aufstellung des knapp 50 Tonnen schweren Abhitze-Kessels am 20./21. April 1999 (siehe Abb. 4). Vom 40 m langen Spezialtransporter, der nach 8 Tagen Fahrzeug von Padua (Fa. Idrotermici) hier eintraf, beförderten 3 Mobilkräne den Koloss in seine endgültige Position in der Halle (Geb. 691).

Ende September waren die Montagearbeiten soweit abgeschlossen, dass mit der „kalten“ Inbetriebnahme begonnen werden konnte. Dabei wurden unter anderem Funktionsprüfungen sämtlicher Einzel-Aggregate durchgeführt, das Prozessleitsystem konfiguriert und die einzelnen Messketten durchgeprüft. Anschließend folgte das erste Befüllen des Kessels. Letzte Aktion dieser Phase war der Austrocknungsprozess der Ausmauerung von Drehrohrfen und Nachbrennkammer. Hierbei wurde die Anlage im Dreischicht-Dauerbetrieb zwischen 6. und 13. Nov. 1999 zum ersten Mal nach einem bestimmten Programm mit den Erdgasbrennern auf 850°C aufgeheizt. Die abschließende Inspektion ergab keine Auffälligkeiten.

Am 23. November begann die „heiße“ Inbetriebnahme. Neben umfangreichen Tests mit den gas- und ölbefeuerten Brennern wurden nun erstmals auch Feststoffe (Holzschnitzel, BRAM und Herdofen-Koks) zudosiert. Die automatischen An- und Abfahrprogramme, die Schrittketten und vor allem die Sicherheitsketten und Funktion der Sicherheitseinrichtung wurden intensiv erprobt.

Nach verschiedenen Reparatur- bzw. Restarbeiten und Modifikationen wurde Anfang Februar 2000 der Probetrieb aufgenommen, d.h. dem Nachweis des problemlosen Erreichens der vertraglich vereinbarten Eckdaten Ende März / Anfang April endete. (Abb. 5 zeigt einen Ausschnitt der fertiggestellten Anlage.)

Forschungs- und Entwicklungsziele

Übergeordnete Ziele

Um die eingangs beschriebene Zielsetzung einer Prozessoptimierung hinsichtlich Ökonomie und Ökologie erreichen zu können, wurden folgende Schwerpunkte festgelegt:

● Verfahren integrativ vereinfachen

Eine Verfahrensvereinfachung durch Reduzierung und Kombination von Verfahrensstufen, vor allem in der häufig sehr aufwendig gestalteten Rauchgasreinigung, kann am besten durch so-



Abb. 4: THERESA – Aufbau des fast 50 Tonnen schweren Abhitze-Kessels (21. April 1999).

genannte „Primärmaßnahmen“ erreicht werden. Darunter versteht man Prozessverbesserungen vor allem im heißen Teil, d.h. beim Drehrohr, an der Nachbrennkammer und beim Abhitze-Kessel.

Durch entsprechende Feuerungsführung (z.B. durch Modifikationen bei der Verbrennungslufteinleitung) soll die Bildung unerwünschter Gaskomponenten wie NO_x, molekulare Halogene und organische Halogenverbindungen, aber auch die Entstehung von Partikeln insbesondere kritischer Aerosole unterdrückt werden, um die Rauchgasreinigung einfacher gestalten zu können.



Abb. 5: THERESA – Ausschnitt der fertiggestellten Gesamtanlage (Februar 2000).

● Komponenten verbessern

Hier sollen einerseits die spezifischen Aufgaben der einzelnen Verfahrensstufen besser erfüllt, aber auch Weiterentwicklungen bei der technischen Ausführung z.B. zur Standzeiterhöhung der Feuerfestauskleidung in Angriff genommen werden.

Zur Optimierung des Drehrohrs soll beispielsweise der Anteil spezieller fester Abfälle, die anders nur schwer zu entsorgen sind, gesteigert werden, ohne dabei den Feststoffausbrand und die Qualität der verwertbaren Schlacke zu beeinträchtigen.

Bei der Nachbrennkammer ist zur Verbesserung der Heizwertbilanz

eine Kopplung mit der rekonstruierten Pyrolyseversuchsanlage „PYDRA“, die ebenfalls in 2000 in Betrieb geht, geplant. Durch Einleitung von heizwertreichen Pyrolysegasen aus der PYDRA in die Nachbrennkammer von THERESA wird das Heizwertdefizit von niederkalorischen Flüssigabfällen kompensiert.

● Auslegungsinstrumente weiterentwickeln

Die zur Auslegung von Abfallverbrennungsanlagen bisher nur ansatzweise verfügbaren Rechenprogramme, insbesondere zur mathematischen Simulation der Verbrennung fester Abfälle, können mithilfe der Validierung an der neuen Pilotanlage zu voll einsatzfähigen Instrumenten entwickelt werden. Durch den Pilotmaßstab der Anlage ist die Übertragungsgüte auf Großanlagen gewährleistet.

● Betriebliche Prozessführung optimieren

Moderne Prozessführungssysteme (z.B. Fuzzy Logic-Regelungen, Neuronale Netze) haben in jüngster Vergangenheit bei der Abfallverbrennung enorm an Bedeutung gewonnen, unter anderem aufgrund zunehmender Schwankungen bei der Qualität des Abfalls. Hier bietet THERESA ein ideales Testfeld, in dem der gesamte Prozess erfasst wird und auch die gegenseitige Beeinflussung der verschiedenen Prozessstufen untersucht werden kann.

Das grob skizzierte F+E-Programm kann an dieser Stelle nur den mittelfristigen Trend für THE-

RESA aufzeigen. Langfristig muss THERESA als verfahrenstechnische Pilotanlage betrachtet werden, mit der über die Abfallverbrennung hinaus auch andere Hochtemperaturprozesse z.B. für die Grundstoffindustrie entwickelt werden können.

Kurzfristige Ziele und Vorgehensweise

Der Unterschied der Versuchsanlage THERESA zu einer kommerziellen Großanlage besteht darin, dass nicht die Entsorgung von Abfällen im Vordergrund steht, sondern die präzise Beschreibung der Vorgänge in der Anlage sowie die Frage nach der jeweils besten Fahrweise. Dazu muss zunächst die vorhandene Instrumentierung auf einen möglichst hohen Stand gebracht werden. Vor allem müssen diejenigen Messgrößen intensiv überprüft und einjustiert werden, die für Bilanzierungen benötigt werden. Dies betrifft in erster Linie die Mengen und Zustände der zu- und abströmenden Stoffe.

Anhand von globalen Massen- und Energiebilanzen kann die Plausibilität der gewonnenen Messergebnisse überprüft werden. Dazu wird man Zustände an der Anlage einstellen, die gut reproduzierbar sind. Voraussetzung hierzu ist es, dass das eingesetzte Brennstoffmenue genau

bekannt ist. Man verwendet deshalb Mischungen aus Einzelstoffen, deren Eigenschaften gut bekannt und die in der Verbrennung unproblematisch sind. Sie sollen leicht zu beschaffen sein und sich gut dosieren lassen. Für die anfänglichen Versuche sind folgende Einzelkomponenten vorgesehen:

- Erdgas zum An- und Abfahren sowie als Stützbrennstoff
- Heizöl als hochkalorige organische Flüssigkeit
- Kohle, Holzschnitzel und BRAM (Brennstoff aus Müll) als brennbare Feststoffbestandteile
- Blähschiefer und Glas als inerte Bestandteile des Feststoffs.

Diese Einzelkomponenten werden in unterschiedlichen Mengen und Verhältnissen zueinander eingesetzt. Auf diese Weise lassen sich charakteristische und reproduzierbare Einstellungen herausfiltern, die für weitere Experimente als Grundeinstellung dienen. Bei diesen weiteren Experimenten können dann bei bekanntem Grundzustand beispielsweise Profilmessungen im Drehrohr und der Nachbrennkammer vorgenommen werden oder es kann das Verhalten bestimmter Schadstoffe durch gezielte Beprobungen bestimmt werden.

THERESA als Forschungsverbund

Wesentlich ist für das Forschungszentrum auch der Verbundcharakter einer solchen Pilotanlage, an der neben dem ITC die Institute und Hauptabteilungen IKET, IAI und HVT entscheidend beteiligt sind. PSA und HIT waren die verantwortlichen Partner für Planung, Abwicklung und Inbetriebnahme, doch werden die wertvollen Beiträge der beteiligten Mitarbeiter dieser Einheiten auch in der nun beginnenden Betriebsphase unerlässlich sein.

Bei den externen Kooperationspartnern konzentriert sich die Zusammenarbeit zunächst auf den Anlagenlieferanten Lurgi, aber auch mit Betreibern wie der HIM und BASF sowie den Universitäten Karlsruhe, Heidelberg und Stuttgart sind Projekte der Zusammenarbeit in Vorbereitung.

Experimentelle Untersuchungen und numerische Simulation des Verbrennungsprozesses auf dem Rost

H. Hunsinger, K. Jay, ITC; B. Peters, IKET

Einleitung

Die Verbrennung von Hausmüll in Rostfeuerungen ist ein seit mehr als 100 Jahren angewandtes Verfahren zur thermischen Abfallbehandlung [1]. Allein in Deutschland sind heute über 50 Anlagen in Betrieb. In den letzten Jahren wurden durch gesetzliche Vorgaben (17. BImSchV) die Emissionsgrenzwerte für Stäube, Schwermetalle und Schadgase wie CO, org.C, HCl, SO₂, HF und NO_x deutlich verschärft. Zusätzlich wurde für polychlorierte Dibenzo-p-dioxine und Dibenzofurane (PCDD/F) ein Grenzwert von 0,1 ng TEQ/Nm³ vorgeschrieben (TEQ=Toxizitätsäquivalente). Parallel dazu stiegen die Qualitätsanforderungen für die Rostasche mit dem Ziel einer Verwertung z. B. im Straßenbau.

Insbesondere die Abgasgrenzwerte für PCDD/F und NO_x erfordern bei älteren Anlagen eine Ergänzung der Rauchgasreinigung durch adsorptiv und/oder katalytisch wirkende Stufen. Dadurch erhöhen sich drastisch die Kosten für die thermische Abfallbehandlung. Bei neueren Anlagen werden heute meist multifunktionale Rauchgasreinigungsverfahren installiert. So können z. B. durch Eindüsung von Kalk/Kohlenstoffmischungen vor einem Gewebefilter (Trockensorptionverfahren) neben der Staubabscheidung auch die Absorption von sauren Schadgasen und die Adsorption von PCDD/F gleichzeitig in einem Apparat erfolgen. Allerdings wird hierbei die Schadstoffproblematik in die aus dem Filter ausgetragenen Reststoffe verlagert.

Ein bisher nur wenig ausgeschöpftes Potential zur Kostenreduktion bei der Abfallverbrennung liegt in der Optimierung des Verbrennungsprozesses. Falls es gelingt, die Feuerung so zu steuern, dass die Bildung von einzelnen Schadstoffen deutlich minimiert wird, kann der Aufwand für die Abgasreinigung reduziert und eventuell auf einzelne Abgasreinigungsstufen ganz verzichtet werden. Insbesondere für die Schadstoffe NO_x [2], aber auch für organische Schadstoffe wie PCDD/F [6,13], deren Bildung durch die Feuerführung beeinflusst wird, bestehen gute Chancen einer primärseitigen Minderung. Die Reduzierung der NO_x-Konzentration durch feuerungstechnische Maßnahmen ist derzeit Gegenstand eines HGF-Strategiefonds-Forschungsvorhabens.

Voraussetzung für eine primärseitige Schadstoffminderung ist die Kenntnis der Bildungsmechanismen, deren Basis eine detaillierte Beschreibung des gesamten Verbrennungsvorganges sein muss. Allerdings sind bisher nur wenige Daten aus Abbranduntersuchungen bekannt [3-5]. Insbesondere sind systematische Parameterstudien derzeit nicht verfügbar. Die im Forschungszentrum Karlsruhe betriebene halotechnische Versuchsanlage TAMARA (Testanlage zur Müllverbrennung, Abgasreinigung, Rückstandsverwertung und Abwasserbehandlung) bietet ideale Voraussetzungen für experimentelle Untersuchungen des Verbrennungsprozesses unter definierten Betriebszuständen. Von besonderem Interesse sind die Einflüsse von unterschiedlichen

Brennstoffqualitäten (Heizwerte, stoffliche Zusammensetzung, Stückigkeit) und die Wirkung von Verbrennungsparametern auf den Prozess, wie z.B. Brennstoffmassenstrom, Verbrennungsluftmengen und -verteilung, sowie Transport des Brennstoffes auf den Rost. Im Folgenden wird über grundlegende Untersuchungen an TAMARA berichtet.

Der Feuerraum von TAMARA

TAMARA ist für einen Mülldurchsatz von 150-300 kg/h und eine maximale Wärmeleistung von ca. 0,5 MW ausgelegt. Der Rauchgasvolumenstrom beträgt max. 1000 Nm³/h. Die Feuerraumgeometrie kann durch Einbau einer variablen Zwischendecke als Gegen-, Mittel- oder Gleichstromfeuerung gestaltet werden. Bei allen nachfolgend beschriebenen Experimenten wird TAMARA als Mittelstromfeuerung betrieben. Der Verbrennungsrost hat eine Gesamtlänge von 3,2 m und eine Breite von 0,8 m. Er ist axial in vier einzelne gleich lange Zonen unterteilt, die jeweils von definierten Primärluftmengen durchströmt werden. Die Verweilzeit des Brennstoffbettes in den Einzelzonen wird durch die individuell einstellbaren Rostparameter Hublänge und -geschwindigkeit geregelt. Zum Ausbrand der Abgase kann zusätzlich weitere Verbrennungsluft über drei verschiedene Sekundärluftbalken im Feuerraum bzw. im ersten Strahlungszug zugeführt werden.

Messtechnik im Feuerraum

Der Verbrennungsprozess lässt sich in die zwei Teilschritte Feststoffabbbrand und Abgasausbrand im Feuerraum untergliedern. Die Trennungslinie zwischen beiden Teilprozessen verläuft entlang der Gutbetttoberfläche. Die Kenntnis der lokalen Gaszusammensetzung und -temperatur und der lokalen Abgasgeschwindigkeit entlang der Rostlänge ermöglicht die Beschreibung der wichtigsten Reaktionen wie Trocknung und Kohlenstoffabbbrand im Festbett. Gleichzeitig dienen diese Daten als Eingangsparameter zur numerischen Simulation des Abgasausbrandes. Die Überprüfung der Rechnungen erfolgt durch entsprechende Messungen am Austritt des Feuerraumes im ersten Strahlungszug.

Mit Hilfe von Thermoelementen und speziell entwickelten Heißgasbeprobungstechniken zur Abgasanalyse können alle wesentlichen Daten experimentell ermittelt werden.

Die Messungen werden wenige Zentimeter oberhalb des Gutbettes an fünf Einzelpositionen durchgeführt. Die Probenahme erfolgt über gekühlte Sonden mit nachfolgender Flugstaubfiltration und Kondensation der Rauchgasfeuchte. Die Konzentrationen folgender gasförmiger Rauchgaspezies werden anschließend mittels Online-Gasanalysatoren gemessen: O_2 , CO_2 , CO , H_2 , $\Sigma \text{ org. C}$ und CH_4 . Die Hauptkomponente von $\Sigma \text{ org. C}$ (s. Kapitel 6) ist Methan. Die Bestimmung der Wasserkonzentration erfolgt über die Kondensationsstufe und

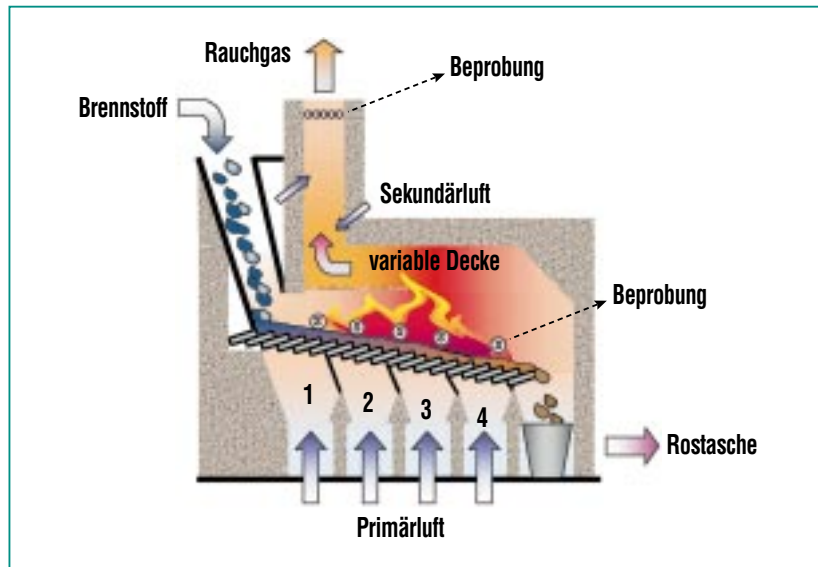


Abb. 1: Feuerraum von TAMARA mit Beprobungsstellen.

die Messung von Kohlenstoffpartikeln (Ruß) über die Analyse des abgeschiedenen Flugstaubes.

Offline-Analysen mittels GC/MS-Kopplung (Gaschromatographie/Massenspektrometrie) von Flugstaub-, Kondensat- und Gasproben ermöglichen zusätzlich die Identifikation und Quantifizierung

einer Vielzahl von primären organischen Verbrennungsprodukten. Über die Bestimmung der Schwermetallkonzentrationen in den Filterproben mittels TRFA (Totalreflexions-Röntgen-Fluoreszenz-Analyse) lässt sich zusätzlich die Mobilisierung einiger Elemente während des Abbrandprozesses beschreiben [10].

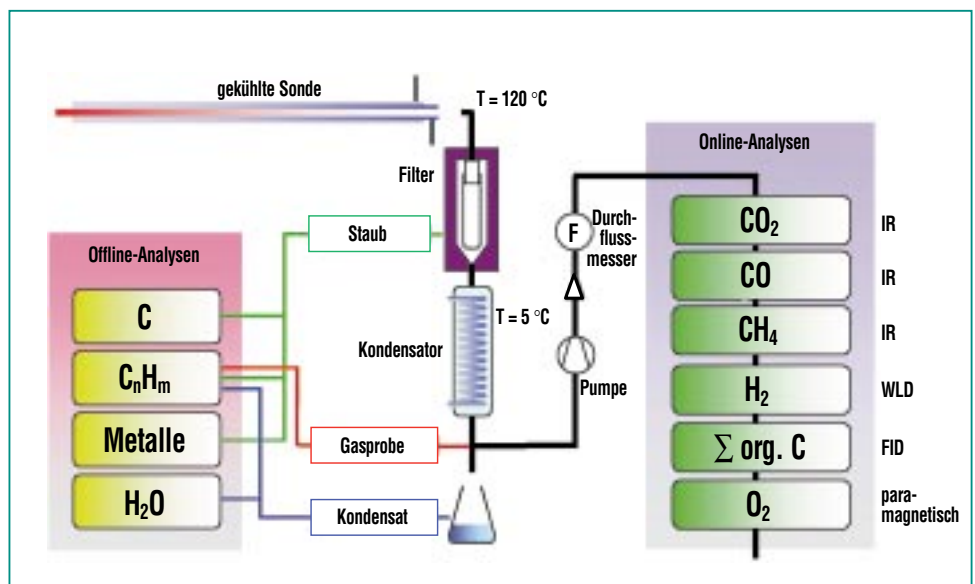


Abb. 2: Beprobungstechnik im Feuerraum.

Brennstoffe

Gegenstand zweier Versuchskampagnen war die Untersuchung des Abbrandprozesses mit verschiedenen Brennstoffmenüs unter konstanten Verbrennungsbedingungen. Die Brennstoffdosierung wurde bei gleichen Rostparametern und konstanter Primärluft so gewählt, dass die Anlage immer mit gleicher thermischer Leistung betrieben wurde. Die zugeführte Primärluftmenge erfolgte überstöchiometrisch mit einer Primärluftzahl $\lambda_{\text{prim}} \approx 1,5$. Die Luftzahl λ beschreibt das Verhältnis von zugeführter zu theoretisch benötigter Mindestsauerstoffmenge für eine vollständige Oxidation von C zu CO_2 und H zu H_2O . Der Basisbrennstoff bestand aus zerkleinertem und homogenisiertem Hausmüll vermisch mit BRAM (**B**rennstoff **a**us **M**üll) im Verhältnis 75:25. Diese Brennstoffmischung entspricht

hinsichtlich ihrer stofflichen Zusammensetzung im Mittel einem deutschen Hausmüll. Zu diesem Brennstoffmix wurden teilweise spezielle Abfallfraktionen wie ASR (**A**utoschredder **R**ückstände), E&E (**E**lektro- und **E**lektronikschrott) und PVC (**P**olyvinylchlorid) zudosiert. Als Vergleich zu den Abfallbrennstoffen wurden zusätzlich zwei Biobrennstoffe (Holzhackschnitzel und Stroh pellets) verbrannt. Die Bandbreite der Heizwerte dieser Brennstoffe erstreckte sich zwischen 8 und 12 MJ/kg.

Trocknung und Kohlenstoffabbrand im Brennstoffbett

Anhand der Messdaten von den Messstellen oberhalb des Brennstoffbettes wurden die axialen Konzentrationsprofile für die primären Verbrennungsprodukte über der Bettlänge berechnet.

Für alle eingesetzten Brennstoffe wurden ähnliche charakteristische Konzentrationsprofile ermittelt. Unterschiede ergaben sich nur in der Lage der Minima bzw. Maxima und in der absoluten Konzentration der Verteilungen. Im nachfolgenden Beispiel sind die Ergebnisse des Experimentes mit dem Basisbrennstoff Hausmüll/BRAM exemplarisch erläutert.

In Abb. 4 sind die Konzentrationsprofile der wichtigsten Gaskomponenten über der Rostlänge dargestellt. Das Sauerstoffprofil entlang des Rostes zeigt ein ausgeprägtes Minimum im Bereich der Rostzone 2. Die O_2 -Konzentration geht an dieser Stelle gegen Null. Gleichzeitig liegt hier das Maximum der CO_2 -Konzentration. An dieser Position findet der höchste Kohlenstofftransfer aus dem Brennstoffbett in das Abgas statt. Der Sauerstoff der zugeführten Primärluft wird an dieser Stelle vollständig aufgebraucht und es kommt zu Pyrolyse- und Vergasungsreaktionen. Dieser Sachverhalt wird durch hohe Konzentrationen an Produkten unvollständiger Verbrennung (CO , C_nH_m , H_2 und Ruß) dokumentiert. Der Ausbrand dieser Verbindungen erfolgt anschließend im Feuerraum. Das Sauerstoffprofil zeigt außerdem, dass die Luftverteilung in den einzelnen Luftzonen nicht optimiert ist. Während in der Hauptverbrennungszone O_2 -Mangel herrscht, wird vor bzw. hinter dieser Zone zuviel Primärluft zugeführt.

Um die Messungen und die daraus abgeleiteten Konzentrationsprofile zu überprüfen, wurden Stoff- und Energiebilanzen um

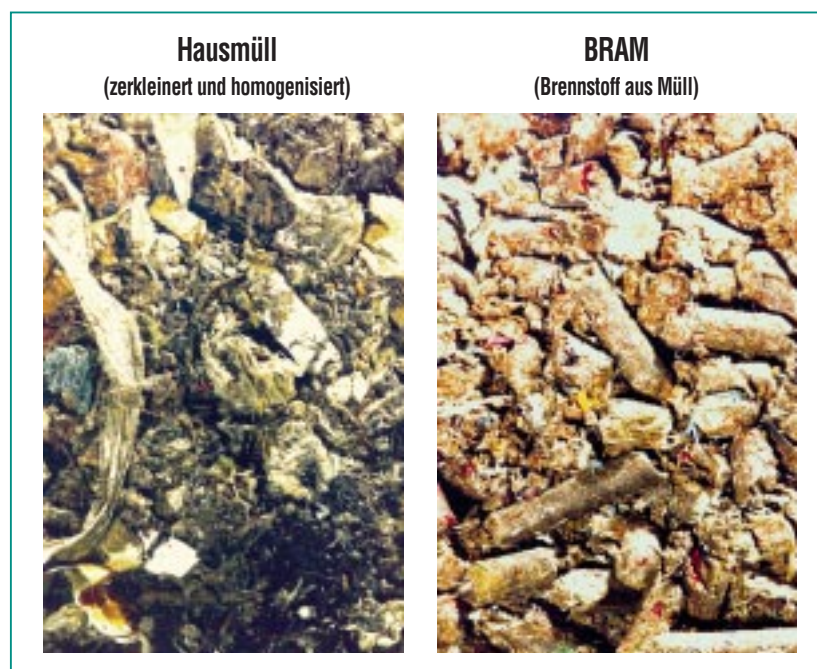


Abb. 3: Abfallbrennstoffmischung (75% Hausmüll + 25% BRAM).

die beiden Reaktionszonen Festbett und Feuerraum berechnet. Im Rahmen der Messgenauigkeit konnten sowohl für die Hauptelemente C, H und O als auch für die Energieströme geschlossene Bilanzen aufgestellt werden [10].

Anhand der vorliegenden Daten lassen sich nun der Trocknungsprozess und der Kohlenstoffabbbrand des Brennstoffbettes über der Rostlänge berechnen. Der Kohlenstoffabbbrand beschreibt den Transfer von Kohlenstoff aus den Brennstoff ins Abgas und beinhaltet alle kohlenstoffhaltigen Spezies wie CO_2 , CO und C_nH_m . Die Ergebnisse sind in Abb. 5 dargestellt.

Wie aus der Abbildung zu ersehen ist, überlagern sich beide Prozesse stark. Die Trocknungskurve ist im Vergleich zum Kohlenstoffabbbrand geringfügig in Richtung Brennstoffeintrag verschoben. Das bedeutet, dass Trocknung und nachfolgend der Kohlenstoffabbbrand von der Bettoberfläche nach unten erfolgen müssen. Diesen Sachverhalt stellt man auch bei Vergleich der axialen Temperaturprofile fest. Während die Temperaturen von Rost und Gutbett (50mm oberhalb des Rostes) in Rostzone 1 noch sehr niedrig sind, ist die Gastemperatur oberhalb des Bettes stark angestiegen. Diese Ergebnisse deuten insgesamt auf eine geringe Vertikalvermischung innerhalb des Brennstoffbettes.

Die Vermischung des Festbettes wird hauptsächlich durch den Rosttyp bestimmt. Bei dem an TAMARA installierten Vorschubrost sollte eine Optimierung durch

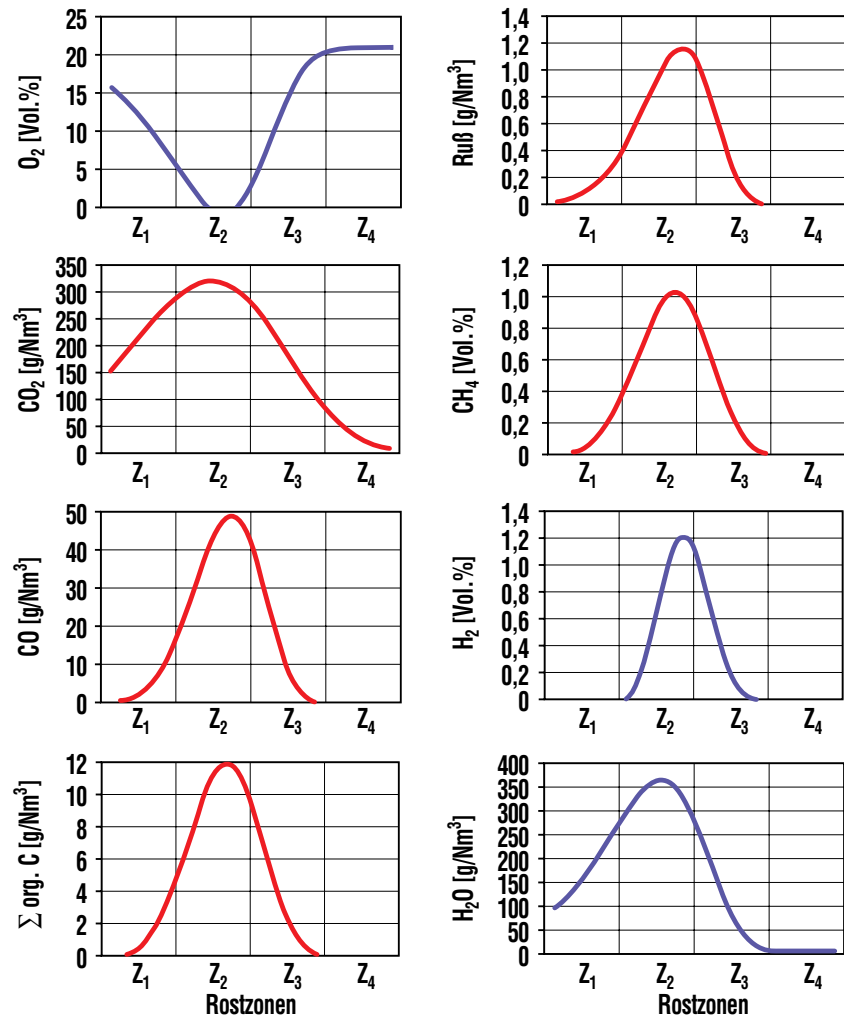


Abb. 4: Axiale Konzentrationsprofile im Rauchgas oberhalb des Gutbettes.

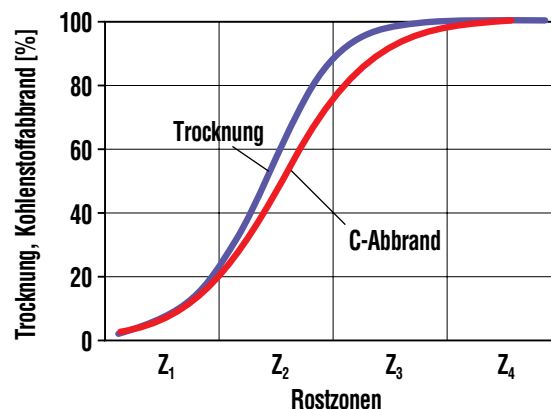


Abb. 5: Trocknung und Kohlenstoffabbbrand im Brennstoffbett.

Änderung der Rostparameter (Frequenz und Hub der Roststäbe) möglich sein, so dass die Hauptreaktionen Trocknung und C-Abbrand den einzelnen Rostzonen besser zugeordnet werden können. Dadurch kann eine gezieltere Zuführung von Primärluft (O_2) in die vier Rostzonen erfolgen.

Der Vergleich der einzelnen Brennstoffe ergab, dass bei den heizwertreichen Brennstoffen (niedrige Feuchten) schon sehr früh die Zündung des Festbettes erfolgt und der Kohlenstoffabbrand auf einem kleinen Teilbereich des Rostes stattfindet. Im Gegensatz dazu benötigen niedrigkalorische Brennstoffe deutlich mehr Zeit zum Ausbrand und damit einen wesentlich längeren Rostweg. Brennstoffe mit hohen Heizwerten führen im Feuerraum zu lokal sehr hohen Konzentrationen an CO, Kohlenwasserstoffen und Ruß.

Produkte unvollständiger Verbrennung

Beim Verbrennungsprozess soll ein möglichst vollständiger Umsatz der im Brennstoff enthaltenen Elemente Kohlenstoff und Wasserstoff zu Kohlendioxid und Wasser erfolgen. Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, sind in den Rauchgasen, die das Brennstoffbett verlassen, sehr hohe Konzentrationen von nicht vollständig oxidierten primären Verbrennungsprodukten vorhanden. Neben CO und Ruß ist vor allem die Kenntnis über Art und Konzentrationen der organischen Verbindungen, die sich hinter

dem Summenparameter $\Sigma \text{ org. C}$ verbergen, von Interesse.

Die Offline-Analysen mittels GC/MS-Kopplung zur Identifikation und Quantifizierung der primär gebildeten Kohlenwasserstoffe aus den Probefraktionen Flugasche, Kondensat und Rauchgas ergeben eine sehr große Anzahl einzelner Verbindungen. Der Anteil der leicht flüchtigen Verbindungen beträgt mehr als 90%. Die Hauptkomponente der Kohlenwasserstoffe ist für alle Brennstoffe Methan. Bei Holz beträgt der Methananteil ca. 65%, bei allen anderen Brennstoffen ca. 45% der Gesamtkonzentration an $\Sigma \text{ org. C}$. Die parallel durchgeführten Online-Messungen mittels IR (Infrarotabsorption) ergeben eine sehr gute Übereinstimmung.

Neben Methan konnten Ethin (bis 12 g/Nm^3), Ethen (bis 12 g/Nm^3) und Benzol (bis 15 g/Nm^3) als weitere Hauptkomponenten identifiziert werden. Die Analysen der Kondensat- und Feststoffproben ergaben eine Reihe von polyzyklischen Aromaten. Die Hauptkomponenten dieser Verbindungsklasse sind Naphthalin (bis 1 g/Nm^3) und Phenanthren (bis $0,5 \text{ g/Nm}^3$). Die angegebenen Maximalkonzentrationen wurden bei den Coverbrennungsexperimenten mit Elektro-/Elektronikschrott gefunden.

Signifikante Unterschiede in der Spezieszusammensetzung der organischen Hauptverbindungen beim Einsatz der unterschiedlichen Brennstoffe konnten nicht nachgewiesen werden. Für alle untersuchten Brennstoffe (auch

die Biobrennstoffe) wurde eine vergleichbare Produktverteilung der oben erwähnten organischen Hauptverbindungen festgestellt. Unterschiede ergeben sich nur in der absoluten Konzentration an $\Sigma \text{ org. C}$.

Viele der identifizierten organischen Verbindungen, insbesondere die aromatischen Kohlenwasserstoffe, sind toxisch. Ein effizienter Ausbrand der Abgase ist daher zwingend notwendig.

Es ist seit langem bekannt, dass für die Bildung von polychlorierten Dibenzo-p-Dioxinen und Dibenzofuranen (PCDD/F) neben den Cl- und Cu-Konzentrationen im Brennstoff die Güte des Abgasausbrandes eine entscheidende Rolle spielt [6, 13]. Bei den in der Abfallverbrennung möglichen Bildungsreaktionen:

- Bildung aus partikulärem Kohlenstoff
- heterogene Gas/Feststoffreaktionen
- homogene Gasphasenreaktionen

sind immer Produkte unvollständiger Verbrennung beteiligt [7].

Beim wichtigsten Mechanismus, der De-Novo-Synthese [6], erfolgt die Bildung von PCDD/F proportional dem Kohlenstoffgehalt der Flugaschen bei Temperaturen oberhalb von 200°C . Insbesondere feindisperse Kohlenstoffpartikel (Ruß) spielen eine entscheidende Rolle [8]. Die Bildung von Ruß erfolgt in komplexen Reaktionen aus kleineren organischen Vorläuferverbindungen (z.B. Ethin, Ethen, Benzol usw.) in der Flamme bei hohen

Temperaturen und unter Sauerstoffmangel.

Um die Bildung von PCDD/F zu minimieren, muss daher der Verbrennungsprozess so geführt werden, dass die Bildung von Kohlenwasserstoffen vermindert bzw. gebildete Rußpartikel möglichst vollständig im Feuerraum oxidiert werden.

Numerische Simulation des Gasausbrandes

Neben experimentellen Untersuchungen stellen Simulationsprogramme zur Berechnung der Verbrennungsprozesse in technischen Anwendungen ein wertvolles Hilfsmittel dar. Mit diesen Methoden können die zwei- oder dreidimensionalen turbulenten Verteilungen der Strömung, Temperatur und Konzentrationen in einem Brennraum berechnet werden. Dazu werden die Erhaltungsgleichungen für Masse, Impuls und Energie auf einem Rechengitter diskretisiert, und das daraus resultierende System von linearen Gleichungen wird in der Regel iterativ gelöst.

Zur Berechnung des Gasphasenumsatzes in der Anlage TAMARA wurde das kommerzielle Programm FLUENT [9] eingesetzt. Die gemessenen Daten der lokalen Gaszusammensetzung, Gastemperaturen und lokalen Primärluftflüsse über der Rostlänge wurden ähnlich der Vorgehensweise von Nasserzahdeh [4] und Dos Santos [3] als Eingangsparameter für die Rechnung verwendet. Die Ausbrandrechnungen beinhalten die Umsetzung von CO, C_nH_m, H₂ und kohlen-

stoffhaltigen Partikeln (Ruß) [11], wobei die Bildung von Ruß im Bereich der Flammen vernachlässigt wurde.

Die Ergebnisse der Rechnung sind in Abb. 6a exemplarisch für

das Konzentrationsfeld von CO des Experiments mit dem Basisbrennstoff Müll/BRAM dargestellt. Der Ausbrand erfolgt bei überstöchiometrischer Primärluftmenge ($\lambda_{\text{prim}} \approx 1,5$) mit dem Restsauerstoff der Luftzonen vor bzw.

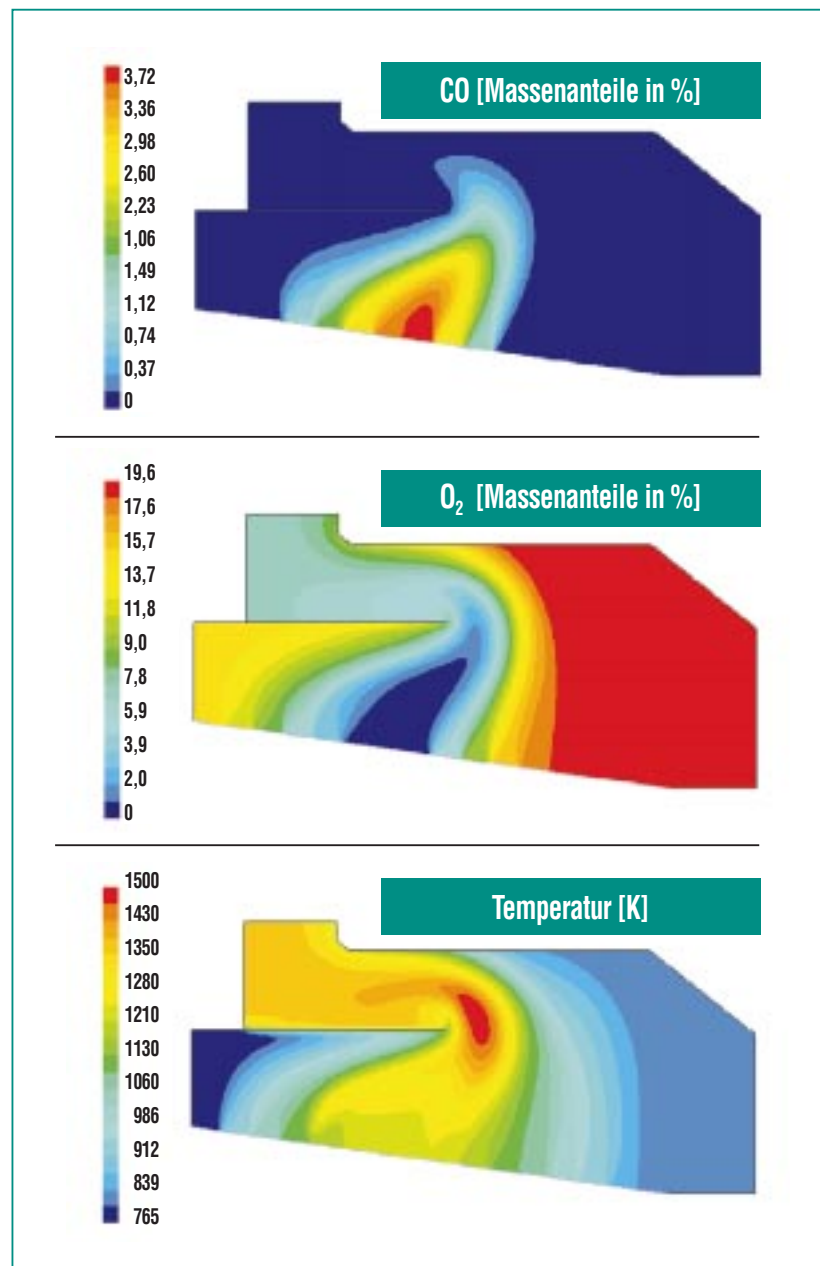


Abb. 6: Abgasausbrand im Feuerraum von TAMARA (FLUENT-Modellrechnungen) – a) Kohlenmonoxidkonzentrationen, b) Sauerstoffkonzentrationen, c) Abgastemperaturen.

nach der Hauptverbrennungszone nahezu vollständig innerhalb des Feuerraums. Deshalb ist eine Zugabe von Sekundärluft im ersten Strahlungszug bei diesen hohen Primärluftzahlen nicht erforderlich. Das Ausbrandverhalten der Kohlenwasserstoffe und des Wasserstoffs ähnelt dem CO-Abbrand, da die turbulente Vermischung der brennbaren Gase mit dem Restsauerstoff aus benachbarten Luftzonen die Ausbrandreaktionen im wesentlichen bestimmt.

Die Rauchgasverweilzeiten innerhalb des Feuerraumes von TAMARA liegen unter den beschriebenen Versuchsbedingungen im Bereich von 3 bis 11 Sekunden. Diese Zeit ist für eine gute Vermischung der Rauchgase bis zum Eintritt in den ersten Strahlungszug ausreichend, was

durch das berechnete Sauerstoffkonzentrationsfeld im Feuerraum belegt wird (Abb. 6b).

Das Temperaturfeld innerhalb des Feuerraumes (Abb. 6c) zeigt ein ausgeprägtes Maximum im Bereich des Ausbrandes von CO und der Kohlenwasserstoffe. Die maximalen Temperaturen betragen bis zu 1230°C. Unter diesen Bedingungen sollten auch thermisch stabile organische Verbindungen weitestgehend zerstört werden. Hierzu sind allerdings detailliertere Untersuchungen notwendig.

Der Vergleich von CO- und O₂-Konzentrationen und von Abgastemperaturen aus den Simulationsrechnungen mit den experimentellen Daten am Feuerraumaustritt ergeben gute Übereinstimmungen.

Ausblick

Die vorgestellte Arbeit zeigt, dass durch Kombination von experimentellen Untersuchungen mit numerischen Simulationsrechnungen der Verbrennungsprozess detailliert untersucht werden kann. Zukünftig sollen Modellrechnungen zum Ausbrand des Festbettes auf dem Rost [12] die vorgestellten Arbeiten ergänzen. Hinsichtlich der Minderung von organischen Schadstoffen wie PCDD/F wurden inzwischen Methoden zur experimentellen Bestimmung von halogenierten organischen Verbindungen in Hochtemperaturzonen entwickelt. Damit ist die Basis für zukünftige Parameterstudien an der TAMARA-Anlage zur Optimierung des Verbrennungsprozesses mit dem Ziel einer primärseitigen Schadstoffminderung vorhanden.

Literatur

- [1] H. Zwahr
VGB Kraftwerkstechnik 76,
(1996) Heft 2, S. 126-133
- [2] H. Vogg, A. Merz, H. Hunsinger,
W. Walter,
Chemie Ingenieur Technik, 68,
(1996), S. 147-149
- [3] A.M. Dos Santos, R. Collin,
*Proceedings of the
fifteenth Biennial
Conference*, (1992),
Detroit Michigan,
May 17-20,
S. 133-143
- [4] V. Nasserzadeh,
J. Swithenbank, C. Schofield,
D. W. Scott, A. Loader,;
A. Leonard; R. Russel,
D. Winn,
Trans. IChemE, 71, (1993),
S. 269-279
- [5] J. Swithenbank, V. Nasserzadeh,
D. Scott, B. Jones,
Waste Management, 11, (1991),
S. 240-261
- [6] H. Vogg, M. Metzger,
L. Stieglitz,
*Waste Management and
Research*, 5, (1987), S. 285-294
- [7] KH. Ballschmiter, R. Bacher,
Dioxine, VCH-Verlag
ISBN 3-527-28768-X (1996),
S. 92-113
- [8] H. Hunsinger, S. Kreis,;
H. Vogg,
Chemosphere, Vol.34, (1997),
S.1033-1043
- [9] *FLUENT Manual* (1999),
FLUENT Incorporated, Centerra
Resource Park, 10 Cavendish
Court, Lebanon, NH 03766
- [10] H. Hunsinger, K. Jay,
J. Vehlow, H. Seifert,
7th Waste to Energy Con-
ference, (1999), May 17-19,
Tampa, Florida,
Proc. S. 199-212
- [11] H.H. Frey, B. Peters,
H. Hunsinger, J. Vehlow,
*5th Internat. Conf. on
Technologies and Combustion
for a Clean Environment*,
Lisboa, P., (1999), July 12-15,
Proc. Vol.1, S. 323-328
- [12] B. Peters,; L. Krebs,
E. Schröder,
in diesem Heft
- [13] H. Vogg, H. Hunsinger,
A. Merz, L. Stieglitz, J. Vehlow,
VDI-Berichte 895, (1991),
S. 193-210

Modellierung der Festbettverbrennung

B. Peters, L. Krebs, E. Schröder, H.-H. Frey, IKET

Einleitung

Verbrennungsvorgänge im Festbett wurden bereits vor ca. 70 Jahren für den Brennstoff Kohle wissenschaftlich untersucht. [1]. Die dabei entwickelten Modellvorstellungen wurden aber weder weitergeführt noch vertieft. Das lag zum einen daran, dass für ein derartig hochkomplexes Problem mit den damals allein möglichen analytischen Lösungsverfahren eine befriedigende Approximation kaum zu erreichen war, zum anderen aber auch daran, dass der Einsatz von Kohlestaubfeuerungen sowie von flüssigen und gasförmigen Brennstoffen zur Energieerzeugung sich seit 1950 immer mehr durchsetzte. Dadurch wurde die Notwendigkeit für eine Modellierung der Festbettverbrennung immer geringer. Dennoch gibt es auch heute noch Anwendungen für die Festbettverbrennung. Hierzu gehören vor allem die Haus- und Sondermüllverbrennung auf Rosten und in Drehrohren. Durch diese Anwendungen wurde der für Anlagenauslegung und Betriebsoptimierung ungenügende Kenntnisstand offenbar. Dies führte neben neueren experimentellen Untersuchungen auch zur Beschreibung der Prozesse durch mathematische Modelle. Gegenüber der Kohlefeuerung kommt bei der thermischen Abfallbehandlung erschwerend hinzu, dass Zusammensetzung und Homogenität des Brennstoffs stark schwanken.

Der für Modellbeschreibungen des Verbrennungsablaufs zu geringe Kenntnisstand und die nur spärlichen Instrumentierungsmöglichkeiten im heißen Bereich

haben eine zumindest teilweise unzureichende Steuerung und Regelung von Müllverbrennungsanlagen zur Folge. Die gesetzlichen Regelungen können dann nur durch zusätzliche Sekundärmaßnahmen eingehalten werden. Beispielsweise kommen zur Schadstoffrückhaltung beim Rauchgas Wäscher, Katalysatoren und Filter in Betracht und für nicht ausreichend ausgebrannte Schlacke kann ggf. ein nachträgliches Aufschmelzen notwendig werden. Die erforderlichen Apparate zur Nachbehandlung der Verbrennungsprodukte nehmen einen beträchtlichen Teil der Gesamtanlage ein und verursachen somit hohe Investitions- und Betriebskosten.

Demgegenüber wird der Möglichkeit der primären Schadstoffminderung im Kernstück der Anlage, dem Brennraum, bisher kaum Aufmerksamkeit geschenkt. Gerade hier liegt jedoch der Schlüssel zur Verbesserung der Prozessführung und damit zur Reduzierung der Kosten. Ein bereits im Festbett besser kontrollierbarer Verbrennungsvorgang, kann den Erfordernissen entsprechend eingestellt werden. Damit entfallen Sekundärmaßnahmen zwar nicht vollständig, können aber signifikant reduziert werden [2]. Dieses vorhandene Potenzial zur Optimierung der Verbrennung ist vor dem Hintergrund des gestiegenen Umweltbewusstseins und verschärfter Umweltschutzaufgaben zu sehen, die die Ausführung von technischen Verbrennungsanlagen in immer stärkerem Maße vorschreiben [3].

In diesem Artikel werden Vorgehensweise und Ansätze zur Modellbildung für die Festbettverbrennung vorgestellt. Die zugehörigen thermodynamischen und strömungsmechanischen Vorgänge sind bezüglich der Beschreibung der Freisetzung thermischer Energie während des Verbrennungsvorgangs in hohem Maße komplex. Ihre Bearbeitung stellt innerhalb der Verbrennungstechnik eine herausfordernde Aufgabe dar. Mit den abzuleitenden Themenstellungen befasst sich das Institut für Kern- und Energietechnik (IKET) des Forschungszentrums Karlsruhe sowohl theoretisch [4] als auch experimentell [5]. Dies erfolgt seit 1999 in dem HGF-Strategiefondsvorhaben „Primärseitige Stickoxidminderung“. Das Ziel dieser Arbeiten ist es, durch eine optimierte Verbrennungsführung in Müllverbrennungsanlagen die Emission von Stickoxiden unter der gesetzlich zulässigen Norm zu halten, ohne eine sekundärseitige Entstickungsanlage vorsehen zu müssen.

Im folgenden wird über die am IKET und im Teilprojekt 3 des HGF-Vorhabens „Numerische Feuerraumsimulation“ bereits durchgeführten Arbeiten berichtet.

Vorgehensweise

In den vergangenen Jahren wurden auf dem Gebiet der Modellierung homogener Gasverbrennung große Fortschritte erzielt. Arbeiten zur Modellierung der heterogenen Feststoffverbrennung lassen jedoch noch einen großen Klärungsbedarf erkennen. Zu Be-

ginn der Problemanalyse werden die in der Literatur identifizierten und beschriebenen relevanten physikalischen und chemischen Mechanismen behandelt, danach erfolgt die Erarbeitung erforderlicher Ergänzungen. Aus der Betrachtung des Gesamtprozesses wird dann ein Modellkonzept abgeleitet, dessen Hauptbestandteile aus der Beschreibung der Partikelumsetzung beim Verbrennungsvorgang, der Festbettbewegung, der Berechnung der Verbrennungsvorgänge im Gasraum sowie deren Einzel- und Gesamtvalidierung besteht.

Gesamtprozess

Wegen der Vielfalt der in einem Festbett gleichzeitig ablaufenden Prozesse, werden in einem ersten Ansatz für die Modellbildung nur die für den Gesamtprozess signifikanten Zustandsgrößen berücksichtigt. Dazu gehören sowohl die die Energiebilanz bestimmenden Größen wie Temperatur- und Geschwindigkeitsfeld im Festbett und im Brennraum als auch die Konzentrationen der für die Verbrennung wesentlichen Spezies. Sie alle steuern die Energiefreisetzung im Brennraum. Die lokal unterschiedlichen Temperaturen stellen die treibende Kraft für die chemische Umsetzung dar, während das Strömungsfeld die Verteilung und Verweilzeit der einzelnen Komponenten bestimmt. Die Kenntnis von Temperatur- und Geschwindigkeitsverteilung im Brennraum und im Festbett bildet eine tragfähige Basis, um in einem darauf aufbauenden Schritt Entstehung und Zerstörung von Schadstoffen im Feuerraum gezielt zu untersuchen.

Die programmtechnische Realisierung wird mit dem im IKET in Entwicklung befindlichen Software-Paket TOSCA (Tools of Object-Oriented Software for Continuum-Mechanics Applications) ausgeführt. Die objekt-orientierte Rechentechnik eignet sich hierfür hervorragend, da jedes Teilsystem als eigenständiges Modell innerhalb der Klassenhierarchie entwickelt und getestet werden kann. Die Koppelung zwischen den einzelnen Modellen wird durch eine geeignete Schnittstelle hergestellt. Diese Vorgehensweise hat zusätzlich den Vorteil, dass sich der Entwicklungsprozess nicht andauernd auf das Gesamtsystem konzentrieren muss und damit auch effizienter innerhalb einer Arbeitsgruppe aufgeteilt werden kann.

Eine phänomenologische Beschreibung des Gesamtprozesses ist in Abb. 1 gegeben. Der Feuerraum ist in das Festbett und den darüber liegenden Gasraum unterteilt. In den Teilbereichen finden unterschiedliche Verbrennungsvorgänge statt. Die Verbrennung im Gasraum wird durch die Gasfreisetzung im Festbett gespeist.

In der Regel bleibt der Brennstoff vor der Beschickung für Drehrohre und Rostfeuerungen unbehandelt. Er kann jedoch bei Bedarf homogenisiert, getrocknet oder zerkleinert werden. Zur Verbrennung wird das Festbett häufig überstöchiometrisch mit Verbrennungsluft versorgt und in Abhängigkeit vom Temperaturniveau wird in verschiedene Bettzonen unterschieden, wobei die Übergänge zwischen den einzelnen Zonen fließend sind.

In der ersten Zone nach dem Eintritt wird der Brennstoff bei etwa 100 °C unter der Wirkung von Strahlungswärme aus dem Feuerraum oder durch vorgewärmte Verbrennungsluft getrocknet. Die im Brennstoff gebundene Feuchte wird verdampft und mit den Rauchgasen als sogenannte Trocknungsbrüde abgeführt. Dabei ist darauf zu achten, dass die Brüden eine Zone heißer Temperatur durchlaufen, um Geruchsfreiheit und Sterilität zu gewährleisten [6].

Bei höheren Temperaturen zwischen 250 °C und 600 °C treten unter weiterer Wärmezufuhr Schwelgase aus. Zusätzlich treten im Brennstoff unter Sauerstoffabschluss oder bei stark unterstöchiometrischer Mischung Zersetzungsreaktionen auf. Die entstehenden gasförmigen Produkte werden als Schwelgase ausgetrieben. Sie zünden bei ca. 500 °C und verbrennen innerhalb der Gasphase über dem Festbett.

In der dritten Zone findet die Vergasung und der Abbrand des verkokten Materials im Temperaturbereich bis zu 1100 °C bei hohem Luftüberschuss und stark bewegtem Festbett statt. Daran schließt sich die Ausbrandzone des Kohlenstoffs in der Asche an.

Unter den genannten Teilprozessen beanspruchen der Trocknungs- und Entgasungsvorgang fast die Hälfte der zur Verfügung stehenden Ofenlänge. Die in diesen Zonen freigesetzten flüchtigen Komponenten müssen ausreichend mit der Verbrennungsluft vermischt werden, um Strahlenbildung und unvollständige Verbrennung zu vermeiden [7].

Eine Ausschnittsvergrößerung in der Bildmitte von Abb. 1 zeigt, dass das Volumen des Festbets aus dem festen Brennstoff und dem Lückenraum, der die Verbrennungsluft mit den Brenngasen enthält, besteht. Feste und gasförmige Bestandteile in dem betrachteten Volumen sind durch Wärme- und Stofftransport miteinander gekoppelt. Während in der Trocknungszone Wärme hauptsächlich vom Gas auf den Feststoff übertragen wird, wird in den übrigen Zonen Wärme vom heißen Brennstoff in die Gasphase im Lückenraum abgeführt. Die Produkte der Trocknungs- und Entgasungsphase werden ihrerseits in den Lückenraum des Festbets freigesetzt und anschließend mit der Verbrennungsluft abtransportiert und über dem Festbett verbrannt. Dadurch befindet sich der feste Brennstoff in einer sehr sauerstoffarmen bis sauerstofffreien Atmosphäre. Sobald die Entgasungsphase und damit die Gasverbrennung zum Erliegen kommt, hat der Luftsauerstoff Zugang zur Brennstoffoberfläche. Dies leitet den Prozess der Vergasung ein. Dieser Prozess kann, wie im unteren Teilbild gezeigt, in verschiedene geschwindigkeitsbestimmende Teilschritte zerlegt werden.

Luftsauerstoff gelangt durch die Grenzschicht an die Brennstoffoberfläche, die mit Poren durchsetzt ist. Anschließend dringen Sauerstoffmoleküle durch die Porenstruktur in das Innere des Feststoffs ein. Dabei spielt der konvektive Transport eine zu vernachlässigende Rolle. Durch Wechselwirkung zwischen den Gasmolekülen und innerer Porenoberfläche wird

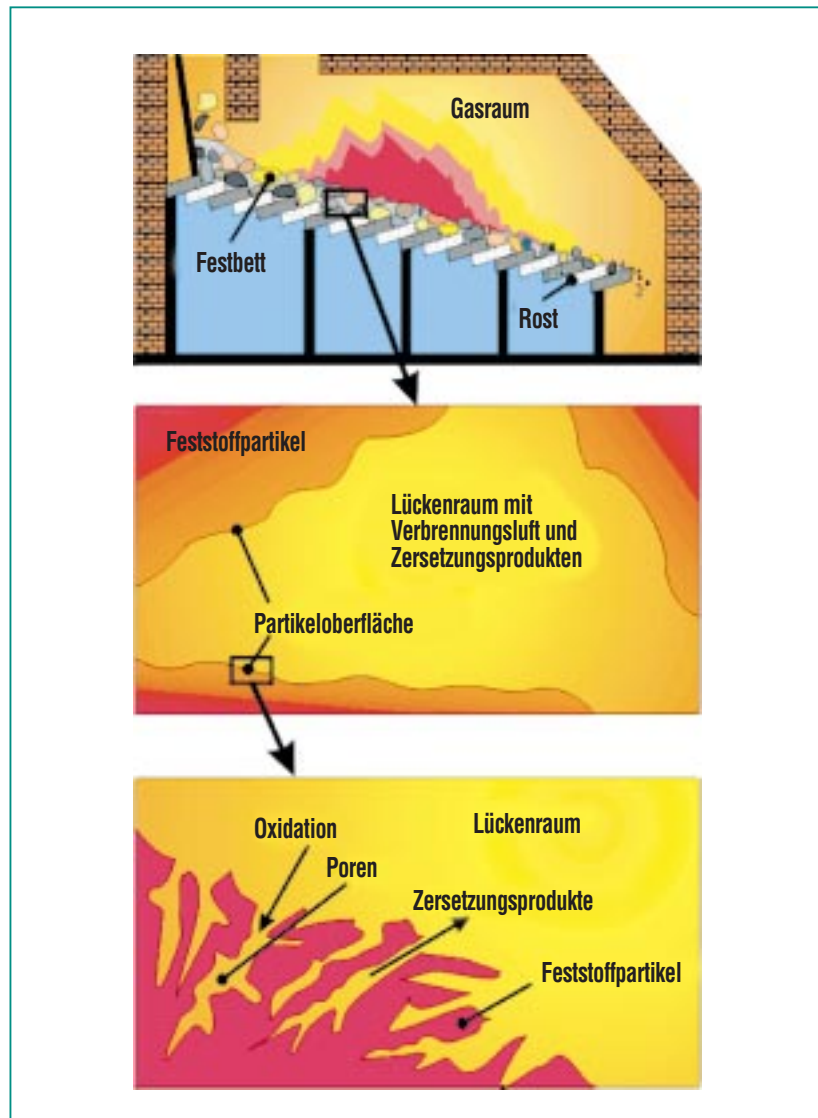


Abb. 1: Prinzipieller Aufbau einer Müllverbrennungsanlage mit Gasraum, Festbett und Rost (oberes Bild), Detailaufbau des Festbets mit Lückenraum und Feststoffpartikel (mittleres Bild), chemische Umsetzung an der Partikeloberfläche (unteres Bild).

Sauerstoff adsorbiert und kann mit dem Brennstoff reagieren.

Die auf der Oberfläche gebundenen Reaktionsprodukte müssen zunächst desorbieren. Sie diffundieren durch den Porenraum und aus der äußeren Grenzschicht in den Gasraum. Die Geschwindigkeit des Gesamtprozesses wird

dabei durch die Geschwindigkeit des langsamsten Teilprozesses bestimmt.

Diese Betrachtungen zeigen, dass sich die Längenskalen des thermischen Zersetzungsprozesses vom Porendurchmesser im Bereich von Mikrometern bis zu den globalen Längen des Brennraums im Be-

reich von Metern erstrecken. Auf diesen Skalen sind alle Vorgänge prozessbestimmend und miteinander gekoppelt, so dass sich Änderungen innerhalb eines Teilprozesses auf das Verhalten des Gesamtprozesses auswirken. Dieser Sachverhalt bedingt die Schwierigkeiten bei der mathematisch-physikalischen Modellbildung, die den gesamten Bereich der Längenskalen zu berücksichtigen hat. Häufig werden deshalb Prozesse auf den kleinsten Längenskalen durch Integralmodelle approximiert, und die Ergebnisse werden in die größeren Skalen eingebettet. Überlagert sind den reaktiv diffusiven Vorgängen im Festbett die Bewegung und Vermischung der Brennstoffteilchen, die im Drehrohr durch die Rotation und bei Rostfeuerungsanlagen durch die Kinematik der Rostelemente bestimmt wird.

Modellkonzept

Um schon während der Auslegung einer Anlage Aussagen über Betriebsverhalten, Sicherheitstechnische Fragen oder Schadstoffausstoß machen zu können oder auch während des Betriebs die Wirkung von Änderungen abschätzen zu können, muss ein möglichst genaues Modell des o.g. Gesamtprozesses erstellt werden. Nach Abb. 2 wird das Gesamtsystem in Teilsysteme zerlegt, für die jeweils ein Modell gestellt wird. Zusammen mit der Wechselwirkung zwischen den Teilmodellen wird das Gesamtsystem beschrieben.

Aufgrund der Existenz von zwei typischen Aggregatzuständen bietet sich eine erste Unterteilung des Systems in Festbett- und Gasverbrennung an. Letztere fin-

det hauptsächlich in einer turbulenten reaktiven Strömung statt.

Demgegenüber wird die Festbettverbrennung durch den Umsatz des Brennstoffs in Abhängigkeit von Luftzufuhr und Strahlung sowie durch die Partikelbewegung des Feststoffes charakterisiert. Im Unterschied zu der kontinuumsmechanischen Betrachtung für das Festbett ist in dieser Arbeit angenommen, dass sich das Festbett aus einer endlichen Zahl von Einzelpartikeln verschiedener Größe und stofflicher Zusammensetzung aufbaut. Die bereits vorliegenden Ergebnisse aus Untersuchungen am Einzelpartikel können so für jedes Partikel angewendet werden und erlauben somit eine genauere Beschreibung der festbettspezifischen Umsetzungsvorgänge. Folglich kann das numerische Modell den Gesamtprozess des Festbetts als die Summe der Einzelprozesse von Partikeln nachbilden. Ergänzt wird diese Methode durch ein Partikelbewegungsmodell, das die Bewegung des Festbetts und die Vermischung der Einzelpartikel im Drehrohr oder auf dem Rost beschreibt. Aus der Berechnung der Bewegungsbahn eines jeden Einzelpartikels lässt sich dann der Transport des Festbetts integral ermitteln.

Dieser Ansatz hat den Vorteil, dass zunächst einmal durch die partikelaufgelöste Betrachtungsweise keine Informationen über die Zusammensetzung des Festbetts verloren gehen. Jedes Partikel ist durch Größe und spezifische Stoffeigenschaften charakterisiert, was eine genaue Beschreibung der Partikelprozesse für jedes Partikel im Festbett von

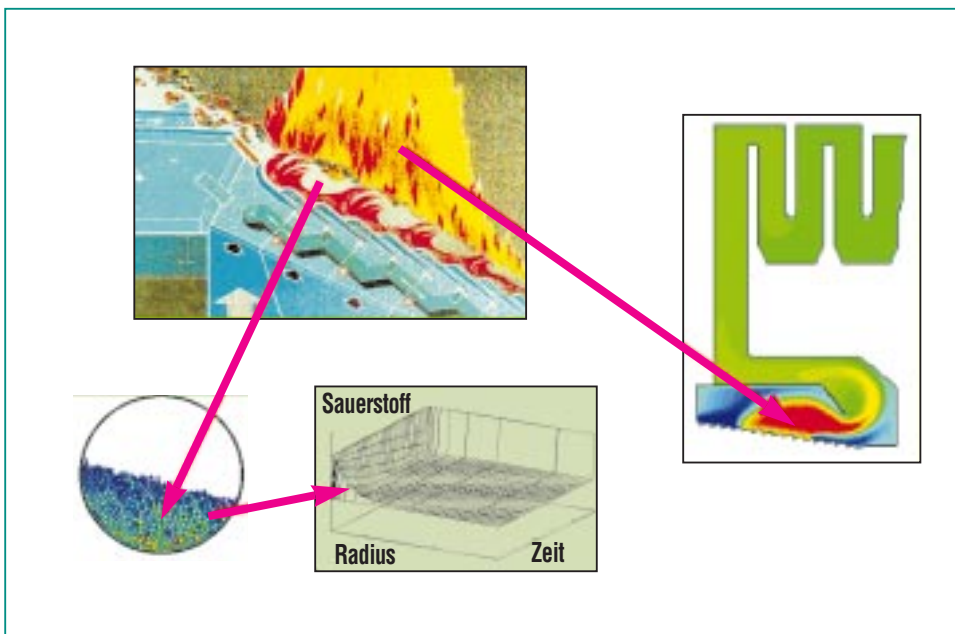


Abb. 2: Schematische Darstellung von Feuerraum und Kessel einer Hausmüllverbrennungsanlage (Bild rechts); Teilprozesse Festbett- und Gasverbrennung (Bild links oben); Partikelbewegung in einem Drehrohr (Bild links unten); Verlauf des Partikelabbrands (Bild Mitte unten).

der Trocknung über die Pyrolyse bis zur Verbrennung zulässt.

Mit diesem Ansatz kann die thermische Belastung von Rosten oder Drehrohren für verschiedene Brennstoffzusammensetzungen untersucht werden. Derartige Schwankungen sind beispielsweise in der Müllverbrennung regional oder jahreszeitlich bedingt. Eine thermische Überlastung der Anlage lässt sich vermeiden, wenn nur Brennstoffmischungen mit einem zuvor berechneten maximal zulässigen Brennwert eingesetzt werden. Ebenso kann für bestehende Anlagen über den Grad der Vorbehandlung, wie beispielsweise Schreddern oder Mischen, der am Ende des Rostes vorgeschriebene Ausbrandgrad eingestellt werden oder auch für einen vorgegebenen Brennstoff die minimale Rost- oder Drehrohlänge einer Neuanlage bestimmt werden.

Außerdem können die Wege von Brennstoffpartikeln durch den Brennraum mit der Temperatur und der Zusammensetzung des die Partikel umgebenden Gases berechnet werden. Dieses erlaubt die Modellierung der Reaktionskinetik speziell interessieren der Schadstoffe. Eine solche Vorgehensweise sollte es ermöglichen, Zusammenhänge zwischen Verweilzeit, Temperatur und Gaszusammensetzung herzustellen und Ursachen dafür anzugeben, warum ein Schadstoff nicht zu unbedenklichen Stoffen thermisch zersetzt wird. Ein interessantes erstes Beispiel stellt in diesem Zusammenhang die Verringerung der NO_x-Bildung dar.

Partikelumsetzung

Wie bereits erläutert, wird das Festbett als eine Schüttung von Einzelpartikeln betrachtet, die durch ihre Anordnung den Lückenraum im Festbett bilden. Durch den Lückenraum strömt die Verbrennungsluft, die über Wärme- und Stoffaustausch eine Kopplung zu den einzelnen Partikeln herstellt. Die Einzelpartikel unterscheiden sich in der Regel durch Form, Größe und Materialeigenschaften. Im Hinblick auf die thermischen Umsetzungsprozesse im Festbett durchlaufen die Partikel einen oder mehrere der folgenden Prozesse: Aufheizung, Trocknung, Pyrolyse, Vergasung und heterogene Verbrennung. Diese Prozesse werden durch ein Partikelmodell basierend auf den Erhaltungsgleichungen für Masse und Energie beschrieben. In ersten Rechnungen wurde das Modell auf den schon komplexen Brennstoff Holz angewendet, wobei die thermische Umsetzung von Holz bereits alle o. g. Prozesse umfasst. Die folgende Abb. 3 zeigt als Ergebnis dieser Rechnung die Masseabnahme eines

kugelförmigen Holzpartikels (40 mm Durchmesser) aufgrund von Trocknung, Pyrolyse und heterogener Verbrennung.

Durch Wärmetransport aus der Verbrennungsluft heizt sich das Holzpartikel zunächst auf, wodurch im Holz gebundenes Wasser verdunstet. Nachdem der Trocknungsvorgang abgeschlossen ist, steigen die Temperaturen weiter, so dass aufgrund von Pyrolyse Zersetzungsprozesse innerhalb des Holzpartikels stattfinden. Die Zersetzungsprodukte bestehen aus einer gasförmigen Phase mit Kohlenmonoxid und Kohlendioxid und aus einer festen Phase mit Koks als Hauptbestandteil. Während des Pyrolysevorgangs bis zu einem Zeitpunkt von ca. 500 s nehmen die Produkte der gasförmigen Stoffe und des Koks zu. Gegen Ende der Pyrolyse setzt bereits am äußeren Rand des Partikels die heterogene Verbrennung ein, die den gebildeten Koks in Kohlenmonoxid umsetzt. Damit nimmt die Masse des Holzes weiterhin ab, allerdings mit merklich kleineren Raten als während des Trock-

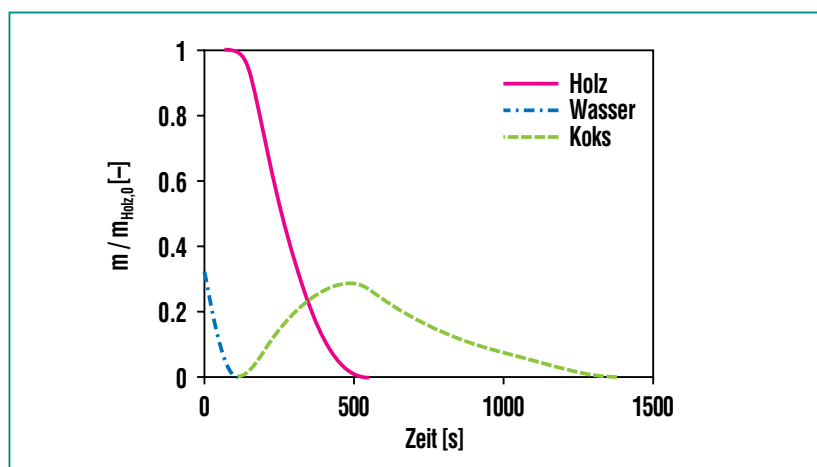


Abb. 3: Masseverlust bei der thermischen Holzumsetzung.

nungsvorganges und der Pyrolyse. Dieses Verhalten stimmt gut mit experimentellen Erfahrungen überein, die zeigen, dass die meiste Zeit und damit der überwiegende Teil der Rostlänge für die Verbrennung der aus Pyrolyse und Trocknung des Holzes entstandenen koksartigen Produkte benötigt wird.

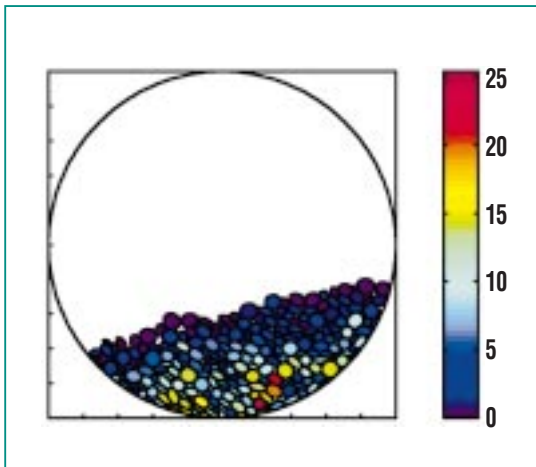


Abb. 4: Partikelbewegung und Kraftverteilung [N] im Drehrohr.

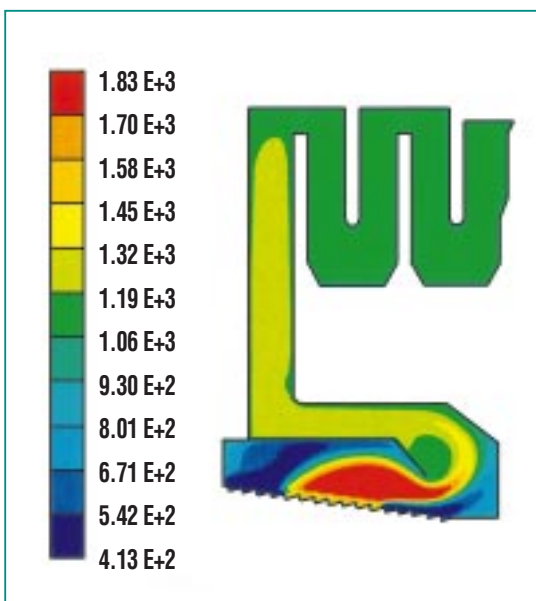


Abb. 5: Temperaturverteilung [K] im Feuerraum der TAMARA.

Festbettbewegung

Zusätzlich zu den Teilmodellen für die thermischen Umsetzungsprozesse erfordert das Gesamtmodell eine Beschreibung der Festbettbewegung. Das Festbett wird auf dem Rost durch Vorschub/Rückschub oder im Drehrohr durch Rotation befördert. Durch diese Bewegung werden die Partikel eines Festbetts durch den Feuerraum transportiert. Zur numerischen Beschreibung der Festbettbewegung besteht das Bett wiederum aus einer endlichen Anzahl von Einzelpartikeln, die gegenseitig Kräfte aufeinander ausüben. Unter Anwendung des zweiten Newtonschen Gesetzes kann die Summe der Kräfte auf ein Partikel bestimmt werden und daraus die Bahn des Partikels innerhalb des Feuerraums berechnet werden. Basierend auf dieser Modellvorstellung wurde die Bewegung eines Festbettes bestehend aus einer Anzahl von nicht kugelförmigen Partikeln in einem Drehrohr simuliert. Die Verteilung der Partikel im Drehrohr zu einem bestimmten Zeitpunkt während der Rotationsbewegung ist in Abb. 4 dargestellt.

Die Farbskala, mit der die Partikel eingefärbt sind, repräsentiert die Größe der auf die Partikel wirkenden Kräfte. Deutlich erkennt man in der Abbildung die heterogene Verteilung der Partikelkräfte, die sogar bei benachbarten Partikeln große Unterschiede aufweisen können. Die Kräfteverteilungen bilden u. U. brückenähnliche Gebilde, die aus mehreren Partikeln bestehen. Diese tragen entscheidend zum Bewegungsverhalten des Festbettes bei.

Gasraum

Die physikalisch-chemischen Eigenschaften einer reaktiven, turbulenten Strömung lassen sich mit Hilfe von Differentialgleichungen mathematisch beschreiben. Es handelt sich hierbei um die Transportgleichung für Energie, Impuls und Masse. In diesen Gleichungen setzt sich die zeitliche Änderung einer beliebigen Zustandsgröße aus dem konvektiven und diffusiven Nettotransport sowie den Quellen und Senken zusammen. Da die energetische Umsetzung des Brennstoffs als Quellterm in die Transportgleichungen eingebunden ist, bedingen sich die charakteristischen Parameter Strömung, Temperatur und Konzentration in technischen Flammen gegenseitig.

Zur Berechnung der Umsetzungsprozesse im Feuerraum der TAMARA wurde das kommerzielle Programm FLUENT eingesetzt. Die Abb. 5 zeigt die Temperaturverteilung im Feuerraum der TAMARA unter realen Bedingungen, wobei zunächst vorgegebene Stoffströme aus dem Festbett als Massenströme in den Brennraum zugrunde gelegt wurden. Die höchsten Temperaturen mit ca. 1800 K treten im Bereich des Zentrums des Verbrennungsraumes auf. Links und rechts der Hauptumsatzzone wird Kaltluft von weniger als 400 K mit den warmen Verbrennungsgasen gemischt. Dieser Mischungsprozess setzt sich bis zum Ausgang aus dem Brennraum fort, so dass dort im Mittel Temperaturen von 1300 K herrschen, lokal unterschiedlich aber Werte zwischen

1170 K und 1350 K auftreten können. Dies stimmt mit ebenfalls lokal gemessenen Temperaturen um 1200 K überein.

Für die im Forschungszentrum neu installierte Anlage THERESA ist in der folgenden Abb. 6 das Strömungsverhalten der Nachbrennkammer durch den Verlauf mehrerer Bahnen von verschiedenen masselosen Partikeln dargestellt.

Durch die geometrische Anordnung des Nachbrennkammereintritts können Partikel bzw. Strömungen sowohl in den unteren Teilbereich als auch direkt in den oberen Bereich der Nachbrennkammer gelangen. Dies bedeutet zusätzliche Rezirkulationszonen und damit unterschiedliches Verweilzeitverhalten für den Rauchgasstrom sowie für die in ihm transportierten Partikel. Aufgrund der unterschiedlichen Verweilzeiten wird eine einheitliche Beschreibung des Konvertierungsverhaltens, insbesondere der Schadstoffkinetik, erschwert. Auch wirken sich Maßnahmen zur Beeinflussung der thermischen Umsetzung und der Schadstoffemissionen verschieden aus.

Validierung

Von großer Bedeutung für die Modellierung des Gesamtprozesses ist die Kenntnis der lokalen und zeitlichen Gasfreisetzungsrate aus dem Festbett als Funktion von Temperatur und Aufheizrate. Es wird angenommen, dass die Gasfreisetzung aus den Feststoffpartikeln in erster Näherung als Pyrolysevorgang betrachtet werden kann, dem festbettabwärts der Partikelabbrand überlagert ist. Für diesen wird angenommen, dass die hierdurch bedingte Änderung der Gaszusammensetzung im Gasraum linear superponiert werden kann. Da Müll ein außerordentlich heterogener Brennstoff ist, ist es für vergleichende Untersuchungen notwendig, dessen wichtige Eigenschaften konstant zu halten. Aus einer repräsentativen Hausmüllanalyse (Bundesdeutsche Hausmüllanalyse 1985) geht hervor, dass Hausmüll mit geringen Abweichungen die in Tabelle 1 angegebene Zusammensetzung aufweist. Das C/H-Gewichtsverhältnis beträgt etwa 7,7 und der mittlere Heizwert liegt bei 8500 kJ/kg. Daher wurde ein Referenzbrennstoff mit der ebenfalls in Tabelle 1 angegebenen Normzusammensetzung definiert, des-

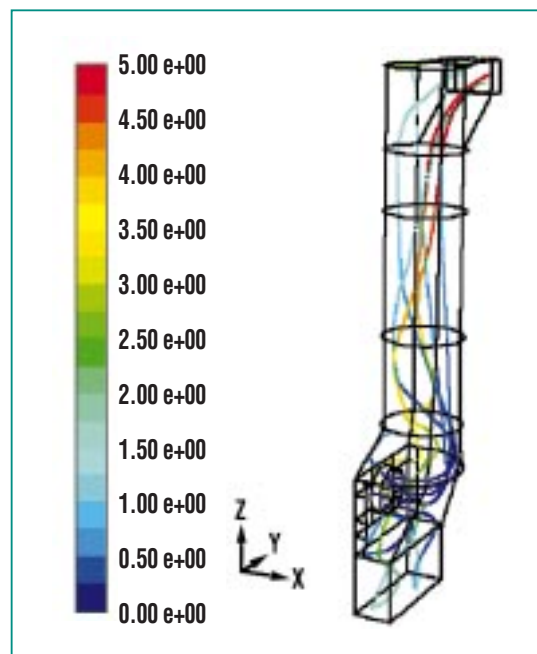


Abb. 6: Partikelbahnen in der Nachbrennkammer von THERESA.

sen Abmessungen im Vergleich zur Stückigkeit des Hausmülls jedoch herunterskaliert sind.

Für diesen Referenzbrennstoff wird in der Pyrolyseanlage PANTHA (Pyrolyse-ANlage zur THermischen Abfallbehandlung) die Gasfreisetzung als Funktion von maximaler Pyrolysetemperatur und Aufheizrate bestimmt. Abb. 7 zeigt ein Prinzipbild der Laboranlage, die zur Pyrolyse von 3 kg Festbrennstoff ausgelegt ist.

Anteil	Hausmüllanalyse	Referenzbrennstoff
34,5 %	Biomasse	Holzwürfel (Kantenlänge 10mm, Buche, trocken)
5,5%	Kunststoff	Polypropylen (kugelförmig, 10mm Durchmesser)
30 %	Wasser	Wasser
30%	Inertmaterial	Blähschiefergranulat (8-10mm Längenskala)

Tab. 1

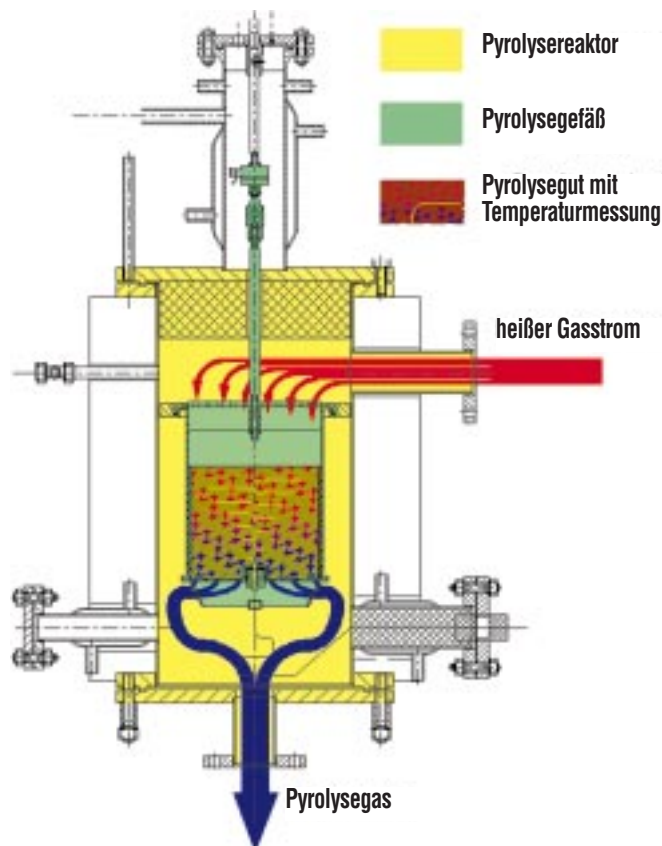


Abb. 7: PANTHA.

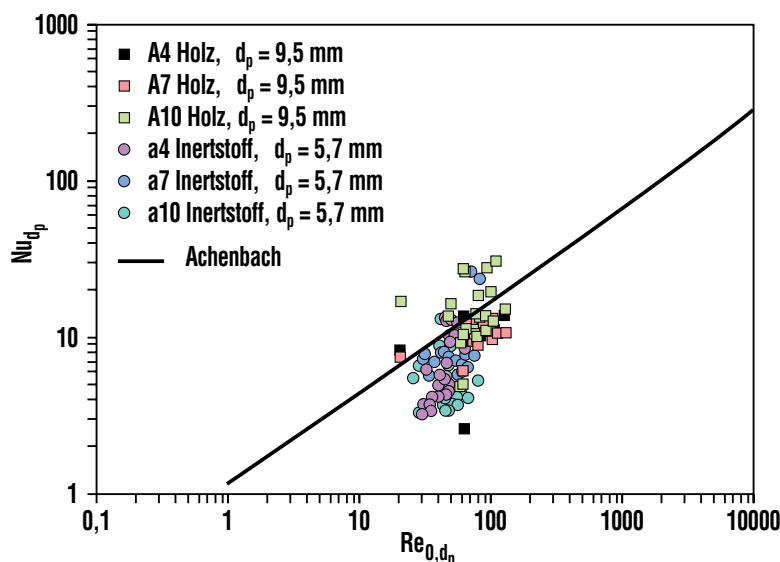


Abb. 8: Wärmeübergang im Festbett.

Sie besteht aus einem von außen beheizbaren Behälter und einem inneren Korb, in den das von einem inerten Heizgasstrom durchströmte Pyrolysegut eingebracht wird. Die Temperatur im Festbett wird mit Thermoelementen kontinuierlich gemessen, der Gewichtsverlust des Pyrolyseguts durch Wägung in vorgegebenen Zeitabständen bestimmt. Die Speziesmessungen werden außerhalb der Anlage im Pyrolysegasstrom durchgeführt.

Auf einfache Weise kann mit dieser Anlage durch Abweichung von der Normzusammensetzung des Referenzbrennstoffs auch der Einfluss eines größeren oder kleineren Anteils an Wasser oder organischer Substanz untersucht und bestimmt werden. Selbst für Hausmüllfraktionen können die charakteristischen Abweichungen vom Referenzbrennstoff festgestellt werden.

Zunächst wurden grundlegende Experimente zur Bestimmung des Wärmeübergangs in einem Festbett durchgeführt. Ergebnisse hierzu sind in der folgenden Abb. 8 dargestellt.

Aufgetragen ist die Nusselt-Zahl als Funktion der Reynolds-Zahl für Schüttungen aus Blähschiefer und Holzwürfel. Zum Vergleich mit den Messergebnissen ist die empirische Korrelation von Achenbach [8] eingezeichnet. Die Streuung der Messwerte ist neben Messungenauigkeiten auf unzureichende Stoffdaten, Abschätzungsfehler bei der Bestimmung der Partikeloberfläche und ungleichmäßige Strömungsverhältnisse im betrachteten Rey-

nolds-Zahlen-Bereich zurückzuführen. Der Vergleich zeigt jedoch, dass die empirische Korrelation mit ausreichender Genauigkeit zur Beschreibung des Wärmeübergangs für Festbetten verwendet werden kann.

Zur Validierung des Partikelabbrandes und der Partikelbewegung werden in der Literatur beschriebene Experimente verwendet. Nach Fertigstellung des Gesamtmodells sind integrale Validierungsexperimente an TAMARA, THERESA und kommerziellen Müllverbrennungsanlagen vorgesehen.

Schlussbemerkung

Modelle sind in der Verbrennungstechnik zu einem unverzichtbaren Hilfsmittel für die Anlagenauslegung und die Betriebsoptimierung geworden. Unter der Voraussetzung einer korrekten Validierung und der Anwendung nur innerhalb ihres Gültigkeitsbereiches liefern die Modelle genaue Informationen über den Verbrennungsprozess und tragen damit zum Verständnis der physikalisch/chemischen Abläufe bei. Aus den gewonnenen Erkenntnissen lassen sich durch Parameterstudien Maßnahmen zur

Verbesserung des Verbrennungsprozesses ableiten und vorgegebene Ziele wie beispielsweise hoher Energieumsatz bei gleichzeitig niedrigen Emissionen erreichen. Außerdem stellen Modelle eine wertvolle Ergänzung zu Experimenten dar, da sie in der Regel eine höhere Auflösung besitzen und somit experimentelle Kosten reduzieren können.

Literatur

- | | | |
|--|---|---|
| [1] E. Tenner,
<i>Universität Darmstadt, 1933</i> | [4] B. Peters,
<i>KfK 5385, Karlsruhe 1994</i> | [8] E. Achenbach,
<i>7th Int. Heat Transf. Conf.,
pages 3 – 8, 1982</i> |
| [2] K. J. Thome-Kozmiensky,
<i>EF-Verlag Berlin, 1983</i> | [5] E. Schröder,
<i>FZKA 6373, Karlsruhe 1999</i> | |
| [3] G. Ychobanoglous,
H. Theisen,
<i>McGraw Hill Book Company,
1977,</i> | [6] K. Görner,
Springer Verlag, 1991 | |
| | [7] K. Sattler, J. Emberger,
<i>Vogel Buchverlag, 1992</i> | |

Technische Maßnahmen zur Minderung von Verbrennungsaerosolen

H.-R. Paur, W. Baumann, B. Becker, H. Mätzing, H. Seifert, ITC

Einleitung

Aerosole, wie zum Beispiel der Rauch aus Verbrennungsanlagen für Abfall und Biomasse (Holz, Stroh etc.), sind disperse Systeme von Feinstpartikeln und Gasen [1]. Charakteristisch für Aerosole ist die Wechselwirkung der Feinstpartikeln untereinander sowie mit der sie umgebenden Gasphase, die zur Änderung der Anzahlkonzentration, der Partikelgrößenverteilung sowie der chemischen Zusammensetzung führt.

Zur Rückhaltung der Feinstpartikeln und Schadgase werden komplexe und teure verfahrenstechnische Anlagen eingesetzt. In den letzten Jahren sind für Anlagen, die nach der 17.BImSchV (Abfallverbrennungsanlagen-Verordnung) genehmigt werden, eine Reihe von „perfekten“ Problemlösungen entwickelt worden, deren Vermarktung und Export aber schwierig ist. Darüber hinaus fehlen einfache Abgasreinigungsanlagen für die im Inland zunehmend eingesetzten Feuerungsanlagen für Biomasse und organische Abfälle insbesondere kleinerer Leistung.

Die wesentlichen Prozesse der Aerosolbildung bei der Verbren-

nung und der Abgasreinigung sind bisher nur in Teilbereichen identifiziert und verstanden. Daher werden oftmals zu aufwendige Verfahren für einzelne Schadstoffe (Feinstpartikeln, gas- und partikelförmige Dioxine, saure Schadgase) eingesetzt, um die gesetzlichen Emissionsgrenzwerte sicher zu unterschreiten. Ziel des Forschungs- und Entwicklungsprogramms „Technische Aerosole“ ist daher die Aufklärung der Aerosolprozesse in technischen Anlagen durch experimentelle und modelltheoretische Arbeiten. So werden die Voraussetzungen für die Vermeidung der Aerosolbildung bei Verbrennungsprozessen sowie für die Integration von Reinigungsstufen geschaffen.

Am Beispiel einer modernen Abfallverbrennungsanlage wird die Bedeutung der Aerosolprozesse deutlich: Nach der Feuerung und dem Kessel sind eine Vielzahl von Komponenten wie z.B. Partikelfilter, Sprühabsorber, Wäscher, Katalysatoren und Adsorber installiert in denen Aerosolprozesse stattfinden, die zur Bildung, Umwandlung und Abscheidung von Schadstoffen führen (Abb. 1).

Außer wirtschaftlichen und wissenschaftlichen Gründen für eine intensive Erforschung der Verbrennungsaerosole ergeben auch umweltpolitische Vorgaben der EU-Kommission einen Handlungsbedarf. Wegen epidemiologischer Hinweise auf die Toxizität von Feinstpartikeln [2] wurden im Jahr 1999 die EU-Immissionsgrenzwerte für Feinstaub ($<10 \mu\text{m}$) abgesenkt [3]. Zudem besteht auch, in Hinblick auf den politisch gewünschten Einsatz von nachwachsenden Rohstoffen zur Energiegewinnung, ein Bedarf für effektive Vermeidungs- und Minderungsverfahren von Feinstpartikelemissionen, ohne die Wirtschaftlichkeit der Verbrennungsprozesse zu beeinträchtigen.

Die Minderung der Aerosolemission bei Abfallverbrennungsanlagen kann durch primäre und sekundäre Maßnahmen erfolgen. Die Optimierung der Verbrennungstechnik (Primärmaßnahmen) mindert die Massenkonzentration der vom Verbrennungsprozess selbst emittierten Partikeln, indem die Masse der gasförmigen Aerosolvorläufer reduziert wird. Die Abgasreinigung (Sekundärmaßnahme) reduziert sowohl die Massenkonzentration als auch die Anzahlkonzentration der Partikeln. Durch die Kombination beider Maßnahmen soll ein wirtschaftliches Optimum erreicht werden, mit dem die einschlägigen Grenzwerte der 17. BImSchV sicher erfüllt werden können.

Im folgenden wird die Bildung des Verbrennungsaerosols und seine Charakterisierung dargestellt. Sodann wird die Modellierung

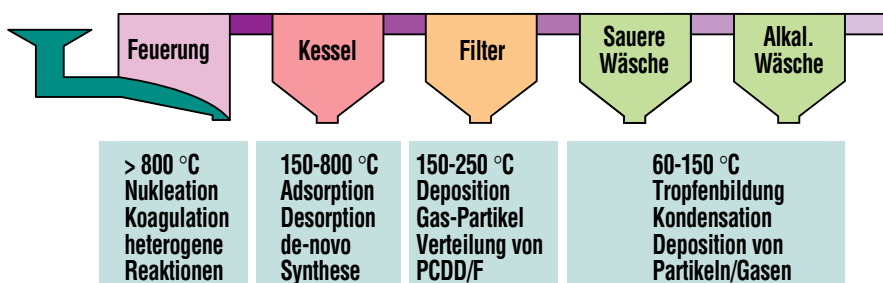


Abb. 1: Aerosolprozesse in einer Verbrennungsanlage.

des Aerosolverhaltens in technischen Anlagen diskutiert. Im dritten Teil werden neuere Untersuchungen zu Bildung und Umwandlung von Dioxinen behandelt. Abschließend werden Beiträge zur Bildung und Umwandlung von Aerosolen in Wäschern sowie kompakte Aerosolabscheider beschrieben.

Bildungsmechanismen und Charakterisierung des Verbrennungsaerosols

Das Verbrennungsaerosol besteht, je nach Brennstoff und Feuerungstechnik, aus unterschiedlichen Komponenten, die in einer weiten Bandbreite variieren.

Bei der Verbrennung von Biomasse und Abfällen entstehen Ruß, Teer und Aschen; daneben verbleibt Unverbranntes:

- Ruß besteht aus graphitähnlichem Kohlenstoff, der durch chemische Reaktionen aus gasförmigen Vorläufern (z.B. Acetylen) entsteht (Abb. 2).
- Teer entsteht durch Kondensation der Pyrolyseprodukte, also nicht vollständig abreagierter Kohlenwasserstoffe.
- Flugaschen entstehen bei der Verbrennung von Brennstoffen, wie z.B. Kohle, Holz, Schweröl, Abfall etc., die mineralische Bestandteile enthalten (Abb. 3).
- Bei unvollständiger Verbrennung können auch teilweise abreagierte Kohlenstoffpartikeln im Verbrennungsaerosol auftreten.

Der Mechanismus der Rußbildung in Flammen wird noch immer intensiv untersucht und ist bisher nur zum Teil aufgeklärt. Die Primärreaktionen von CH_x -Radikalen mit Acetylen führen zum Benzol als Zwischenprodukt. Im sogenannten HACA-Mechanismus (Hydrogen Abstraction – Acetylene Addition) kann dann Benzol mit Acetylen reagieren und bildet polyzyklische Aromaten (PAH). Diese bilden durch Oligomerisation sog. „Aromere“, die entweder durch weitere Addition von Acetylen wachsen bzw. Vor-

stufe der Fullerene sind. In Abhängigkeit von den Dampfdrücken der Additionsprodukte entstehen sodann Primärpartikeln. Die Primärpartikeln wachsen schnell durch Koagulation und bilden Rußaerosole. Die Rußaerosole sind selbst reaktiv und können weiterhin mit gasförmigen Stoffen (Sauerstoff, Acetylen) reagieren bzw. flüchtige Stoffe adsorbieren.

Die Flugaschebildung bei der Verbrennung von Abfällen ist bisher noch nicht untersucht. Kaup-

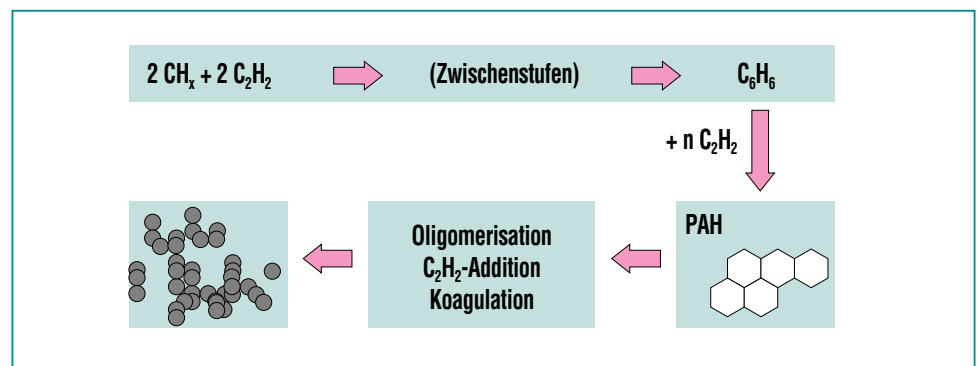


Abb. 2 : Mechanismus der Rußbildung bei der Verbrennung (vereinfacht nach Frenklach, 1992 [4], Homann, 1998 [5]).

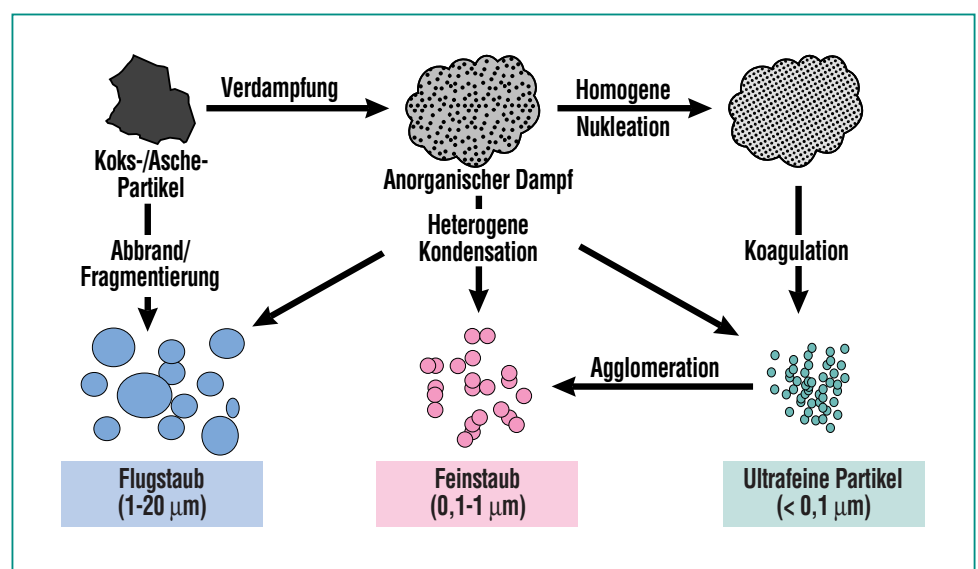


Abb. 3: Aerosolbildung bei der Verbrennung von Koks/Asche-Partikeln.

pinen und Pakkanen [6] unterscheiden bei der Verbrennung von Koks-/Kohle-Partikeln drei Mechanismen (Abb. 3).

- Direkter Abbrand der Koks-/Asche-Partikel führt zu schmelzflüssigen anorganischen Partikeln, die fragmentieren und Flugstaub ($d = 1\text{--}20\text{ }\mu\text{m}$) bilden.
- Flüchtige anorganische Bestandteile verdampfen bei höheren Temperaturen ($1400\text{--}1600\text{ }^\circ\text{C}$). Aus der Gasphase nukleieren bei Abkühlung Primärpartikeln, die schnell zu ultrafeinen Partikeln (UFP; $d < 0,1\text{ }\mu\text{m}$) koagulieren.
- Durch Agglomeration der UFP entstehen größere Partikel, die i.a. als Feinstaub ($d = 0,1\text{--}1\text{ }\mu\text{m}$) bezeichnet werden.

Zusätzlich kondensiert der verbliebene anorganische Dampf

beim Abkühlen auf den vorher gebildeten Partikeln unterschiedlicher Größe und lässt diese weiter anwachsen. Die letztendlich gemessene Größenverteilung des Feinstaubes entsteht aus der Konkurrenz der Nukleation, Kondensation und Koagulation/Agglomeration. Die Gas-Partikelreaktionen im Feuerraum von Verbrennungsanlagen sind noch weitgehend unerforscht. Jedoch gibt es neuere experimentelle Hinweise auf die Reaktion C-haltiger Partikeln mit NO_x , die zum NO_x -Abbau führen. Die heterogenen Reaktionen organischer Chlorverbindungen, die Dioxine produzieren werden derzeit experimentell und theoretisch untersucht [16].

Bei Versuchen an der TAMARA-Anlage konnte die Größenverteilung des bei der Rostverbrennung von Abfällen entstehenden Aerosols erstmals durch REM und DMA im Bereich $10\text{--}1000\text{ nm}$ cha-

rakterisiert werden [7, 8] (Abb. 4). In der Anzahlverteilung liegen 2 Maxima (Modi) vor, einer bei 40 nm und einer bei 150 nm . Gemäß einer parallel durchgeführten Impaktormessung besteht 60% der Masse dieses Aerosols aus Partikeln, die kleiner als $1\text{ }\mu\text{m}$ sind. Ein ähnlicher Befund wurde auch bei der Beprobung des Aerosols einer Holzfeuerung [9] erhalten. Dort wurden 65-80 Massen-% des Gesamtstaubes in der Feinfraktion unter $1\text{ }\mu\text{m}$ gefunden. Während die TAMARA-Partikeln nur etwa 0,1% Kohlenstoff enthalten, beträgt der Anteil von Kohlenstoff im Holzverbrennungsaerosol, je nach Güte der Feuerung, etwa 40% der gesamten Partikelmasse.

Modellierung des Aerosolverhaltens

Die vollständige Beschreibung des Aerosolverhaltens umfasst die in der Abb. 5 gezeigten Aero-

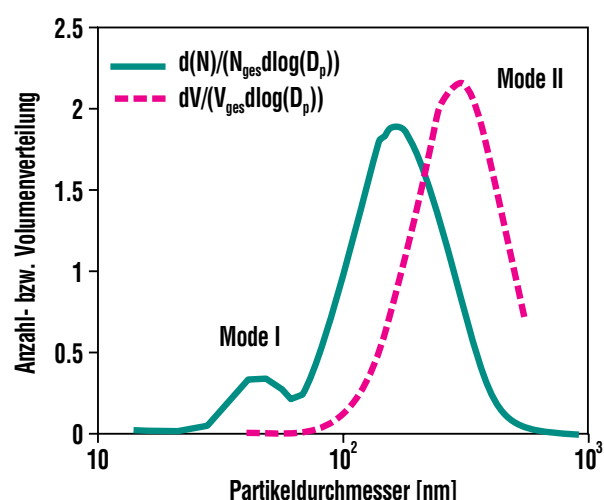
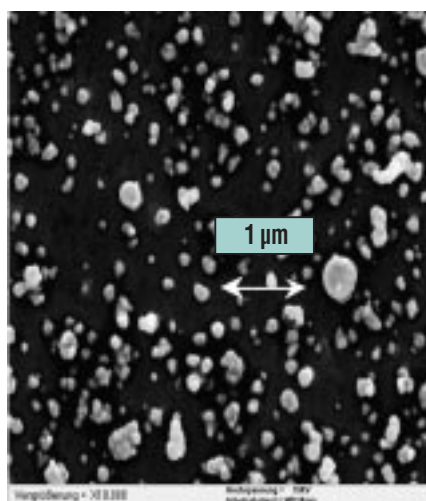


Abb. 4: Rasterelektronenmikroskopische (REM)-Aufnahme des TAMARA-Aerosols und mittels differentiell mobilitätsanalysator (DMA) gemessene Partikelgrößenverteilung des TAMARA-Aerosols vor Schlauchfilter [7, 8].

solprozesse, beginnend mit der Partikelbildung und über einige Transportprozesse und Ablagerungsmechanismen bis hin zur Filtration. Dabei wird nicht ausgeschlossen, daß einige dieser Aerosolprozesse an mehreren Stellen von z.B. Abfallverbrennungsanlagen stattfinden können (Abb. 1). Dort ist nicht nur der Brennraum als Partikelquelle zu betrachten, sondern auch die in Quenchen und Wäschern eingedüsten Wassertropfen sowie in ungünstigen Fällen die Anlagenteile der Rauchgasreinigungsstrecke, die durch ihre niedrige Temperatur und ihren hohen Wassergehalt den Gas-Partikel-Übergang von nicht vollständig ausgewaschenen Säure- und Salzbildnern ermöglichen. In ähnlicher Weise ist auch mit den übrigen in Abb. 5 genannten Aerosolprozessen an mehreren Stellen technischer Anlagen, unter ggf. sehr unterschiedlichen thermodynamischen Bedingungen, zu rechnen.

Ein Rechenmodell [10] zur quantitativen Beschreibung des Aerosolverhaltens in technischen Anlagen erfordert also die Berücksichtigung und Verknüpfung von Aerosoldynamik, Thermodynamik, Reaktionskinetik und Strömungsmechanik. Voraussetzung für die Machbarkeit eines solchen Vorhabens ist die Wahl eines geeigneten mathematischen Verfahrens zur Lösung der Koagulationsgleichungen bzw. der General Dynamics Equation (GDE). Das Lösungsverfahren soll die für die übrigen Transport- und Reaktionsgleichungen benötigten Aerosoleigenschaften mit bestmöglicher Genauigkeit und möglichst

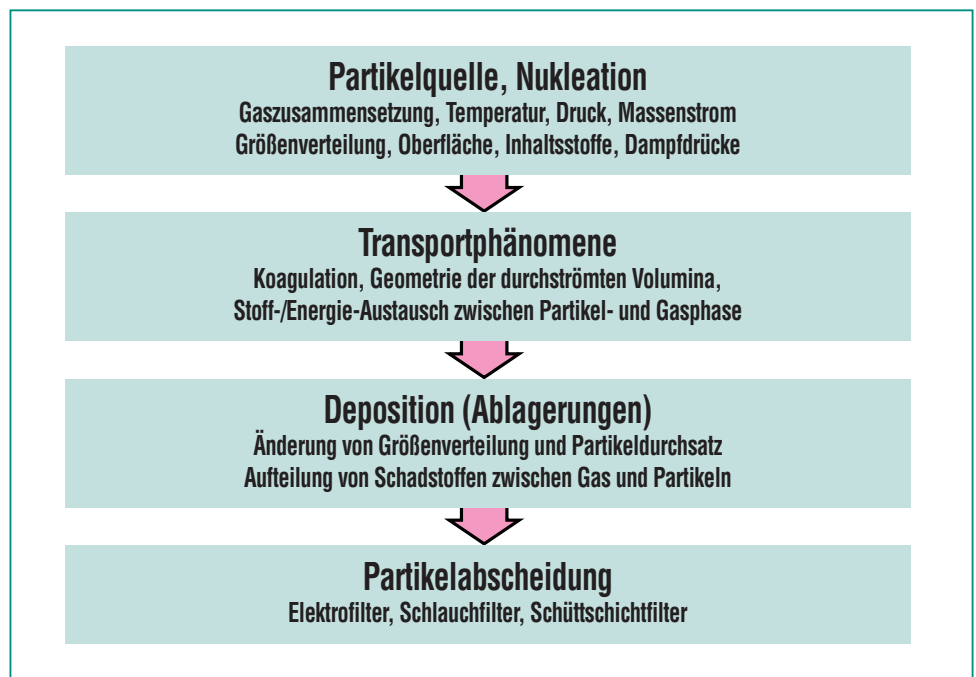


Abb. 5: Aerosolprozesse und zu modellierende Anlagenparameter.

geringem Zeitaufwand berechnen, und es soll mit den anderen Modellteilen verknüpfbar sein. Diese Forderungen lassen sich mit der sog. Momentenmethode erfüllen. Dabei wird der Typ der Größenverteilung oder auch die Überlagerung mehrerer Verteilungen vorgegeben, und es werden – im Gegensatz zu diskreten Modellen – nur integrale Aerosoleigenschaften berechnet, z.B. mittlerer Durchmesser, mittlere Oberfläche, mittleres Volumen (= Momente). Einzelne Größenklassen werden nicht explizit aufgelöst. Daher rührt die geringe Rechenzeit und eine implizit höhere Genauigkeit bzgl. der Massenerhaltung im Vergleich zu diskreten Verfahren. Nachteile der Momentenmethode sind die Beschränkung auf wenige Typen von Größenverteilungen (z.B. log-normal) und auf Fälle, in denen der Kelvin-Effekt vernachlässigt

bar ist, der die Abhängigkeit des Dampfdrucks von der Partikelgröße beschreibt. Die Einschränkung auf log-Normalverteilungen ist unkritisch, da technische Aerosole i.a. gut mit log-Normalverteilungen charakterisiert werden können. Die Vernachlässigung des Kelvin-Effekts ist solange tragbar, wie neben dem Partikeldurchmesser andere Größen (Temperatur, Zusammensetzung etc.) den Dampfdruck der Partikel wesentlich bestimmen. Die Nachteile der Momentenmethode werden durch die Anwendbarkeit auf komplizierte Strömungsverhältnisse, z.B. in gekrümmten Rohrleitungen, Wäschern und Filtern, bei weitem aufgehoben. Darüber hinaus können Abweichungen der Partikel von der Kugelform durch Formfaktoren berücksichtigt werden.

In technischen Abfallverbrennungsanlagen treten häufig Parti-

kel unterschiedlicher stofflicher Zusammensetzung und Größenklassen gleichzeitig auf z.B. Flugasche und Ruß, filtergängiger Staub und Wassertropfen. Um diese Fälle wenigstens qualitativ berücksichtigen zu können, wurde das Aerosolmodell auf binäre, bimodale Größenverteilungen ausgelegt.

Mit Hilfe des Modells [10] kann das Größenwachstum von Natriumsulfatpartikeln in Wäschern berechnet werden. Die Abb. 6 zeigt einen Vergleich zwischen der Modellrechnung und dem Experiment. Bei der Erhöhung der relativen Feuchte über Natriumsulfatpartikeln steigt der Partikeldurchmesser um etwa den Faktor 3. Die Partikelvergrößerung ist demzufolge vor allem auf die Kondensation von Wasserdampf

auf die trockenen Salzpartikeln zurückzuführen. Zur Zeit wird der Aerosolcode für die Berechnung der Gas-Partikelverteilung von schwerflüchtigen Aromaten (Dioxinen) weiterentwickelt.

Bildung und Gas/Partikel-Verteilung von Dioxinen

Polychlorierte Dibenzo-p-dioxine und -furane (PCDD/F) bilden sich bei der Rauchgasabkühlung nach der Verbrennung von Haus- und Sondermüll, aber auch in Holzfeuerungen und bei der Metallverarbeitung. Im Gegensatz zur Bildung von PAH und Ruß entstehen die PCDD/F nicht als direkte Verbrennungsprodukte im Brennraum, sondern hauptsächlich in der Abkühlungszone bei Temperaturen unter 600 °C. Als Bil-

dungsreaktionen werden in der Literatur eine Vielzahl von Reaktionen diskutiert, die in homogener Gasphase, in der kondensierten Phase oder auch heterogen ablaufen, d.h. unter Beteiligung gasförmiger und kondensierter (bzw. fester) Stoffe. Die Reaktionsmechanismen lassen sich in der Reihenfolge steigender Komplexität ordnen:

- homogene Gasphasenreaktionen geeigneter Vorläufersubstanzen
- heterogene Kohlenstoffoxidation mit PCDD/F als Nebenprodukt (de novo-Synthese)
- Gas-Feststoffreaktionen gasförmiger Vorläufersubstanzen
- Gas-Feststoffreaktionen kondensierter Vorläufersubstanzen
- Gas-Feststoffreaktionen gasförmiger und kondensierter Vorläufersubstanzen.

Alle diese Mechanismen sind experimentell untersucht worden, jedoch war es bisher nicht möglich, einem dieser Mechanismen eine eindeutige Präferenz zuzuordnen. Die Arbeit von Shaub und Tsang [11] hat bewirkt, daß homogene Gasphasenmechanismen von den meisten Autoren als unbedeutende PCDD/F-Quellen angesehen werden. Von den heterogenen Mechanismen erscheint die de novo Synthese schon deshalb als wichtigster PCDD/F-Bildungsmechanismus, weil die Konzentration an unverbranntem bzw. elementarem Kohlenstoff mit über 1 g pro kg

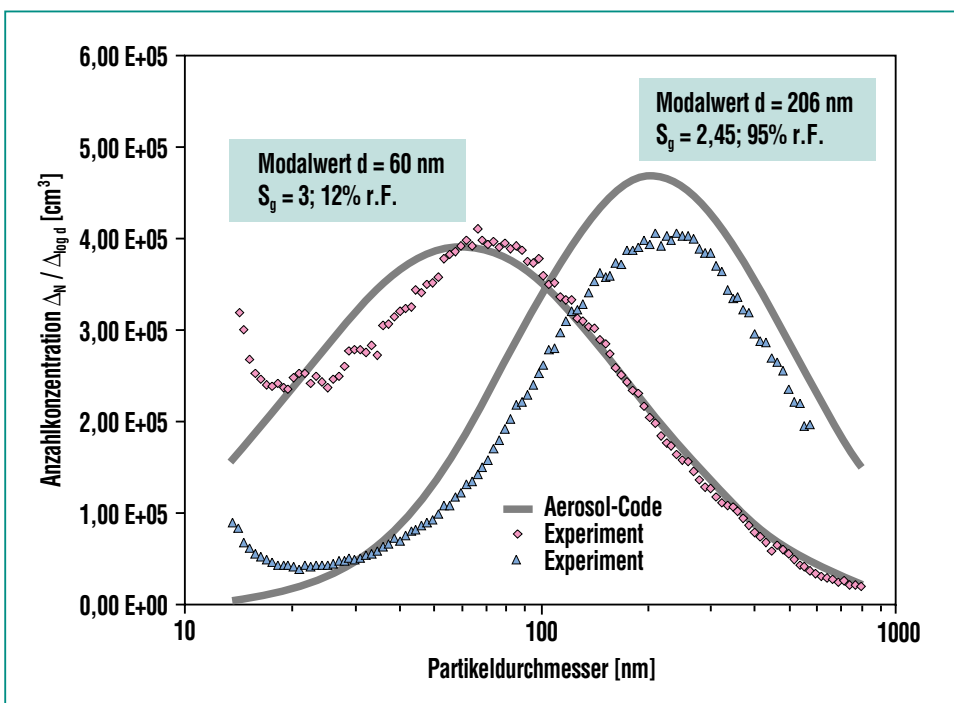


Abb. 6: Wachstum von Natriumsulfataerosol in Abhängigkeit von der relativen Feuchte. Vergleich von experimentellen Daten (Messung mit Mobilitätsanalysator) und Ergebnissen der Modellrechnung.

Staub sehr viel größer ist als die Konzentration sonstiger organischer Stoffe (unter 10 mg pro kg Staub). Daher wurde die de novo Synthese intensiv experimentell untersucht und eine Optimierung des Ausbrands als Primärmaßnahme zur PCDD/F-Minderung angestrebt [12],[13]. In Laborexperimenten wurde gefunden, dass die Voraussetzungen für die de novo Synthese von PCDD/F denkbar einfach sind: Die Anwesenheit von Kohlenstoff und Chlor (bzw. Chlorid) in den Stäuben und von gasförmigem Sauerstoff im Rauchgas reicht aus, um die de novo Synthese einzuleiten, die eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit besitzt und im Temperaturbereich 300-400 °C besonders schnell abläuft. Darüber hinaus können weitere Rauchgaskomponenten die PCDD/F-Bildung beeinflussen. Z.B. katalysieren bestimmte Metallionen, insbesondere Cu^{2+} , die PCDD/F-Bildungsreaktionen. Die Parameterabhängigkeit der de novo Synthese ist experimentell bereits so ausführlich untersucht worden, dass sie sich mit Hilfe eines Computermodells nachrechnen lässt [14]. Abb. 7 zeigt den Vergleich zwischen der experimentell bestimmten und mittels Computermodell berechneten Bildung von polychlorierten Dioxinen und Furanen.

Die übrigen heterogenen Bildungsmechanismen sind experimentell nur sehr schwer zugänglich. Es ist aber bekannt, daß die Reaktion von Chloraromaten z.B. Trichlorphenol in Gegenwart von

Müllverbrennungsflugaschen zur Dioxinbildung führt. Diese Reaktion ist um mehrere Größenordnungen schneller, als die Dioxinbildung aus elementarem Kohlenstoff. Weitere experimentelle und theoretische Arbeiten sind nötig, um die Bildungsmechanismen von PCDD/F aufzuklären und nach ihrer Wichtigkeit einzuordnen.

Durch die Optimierung des Ausbrandes und durch Reduzierung der Verweilzeit im kritischen Temperaturbereich ist es bereits gelungen, die Dioxinbildung in Müllverbrennungsanlagen zu reduzieren [16]. Der vom Gesetzgeber geforderte Emissionsgrenzwert von 0.1 ng TEQ/m_N^3 *) wird jedoch durch diese Primärmaßnahmen allein noch nicht erreicht, so dass üblicherweise weitere Sekundärmaßnahmen erforderlich sind. Wie erst in jüngster Zeit festgestellt wurde, besteht das für die

Emissionsbegrenzung entscheidende Problem nicht nur in einer zu hohen, unerwünschten Dioxin- und Furanbildung. Entscheidend ist vielmehr die ungünstige Verteilung der Dioxine und Furane zwischen der Partikelphase und der Gasphase. Wegen ihrer relativ hohen Flüchtigkeit bleibt ein großer Teil der PCDD/F nicht an den Staubpartikeln adsorbiert, sondern verdampft in die Gasphase. Dieser Anteil ist von vielen Parametern abhängig, z.B. vom Dampfdruck der PCDD/F, von den stofflichen Eigenschaften der Partikel und von der Temperatur. In modernen Müllverbrennungsanlagen erreicht der filtergängige PCDD/F-Anteil häufig 50%. Von den (nassen) Rauchgasreinigungskomponenten nach Filter wird dieser Anteil nicht gemindert. Er kann sich dort sogar anreichern und dadurch eine latente PCDD/F-Quelle darstellen, die überhaupt nicht mehr mit dem

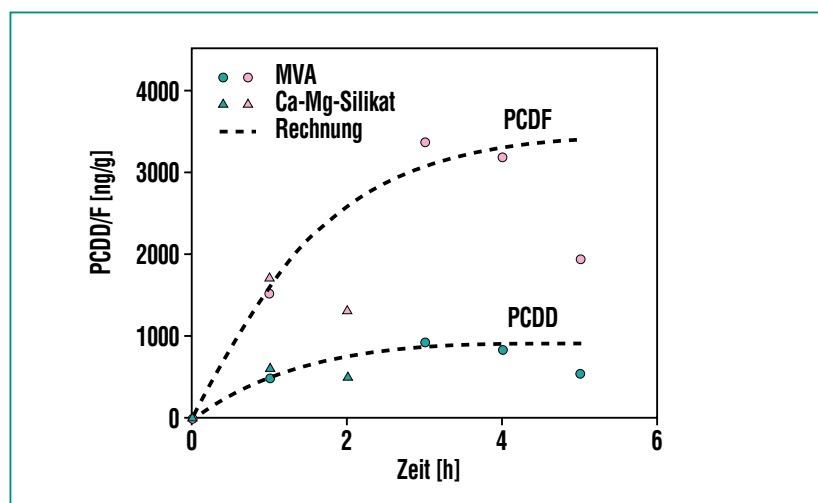


Abb. 7: Vergleich von Experiment [15] und Modellrechnung [14]: PCDD/F-Bildung auf extrahierter Flugasche und Modellflugasche (300°C, trocken).

*) Als TEQ werden die nach NATO-CMMS berechneten Toxizitätsäquivalente bezeichnet. Hierbei werden die Konzentrationen der toxischen Dioxine und Furane (gemessen in ng/m_N^3) durch Multiplikation mit Toxizitätsäquivalentfaktoren auf die Konzentration von 2,3,7,8- Cl_4 -Dibenzodioxin umgerechnet, die in ihrer Toxizität der gesamten Dioxinfracht entsprechen würde.

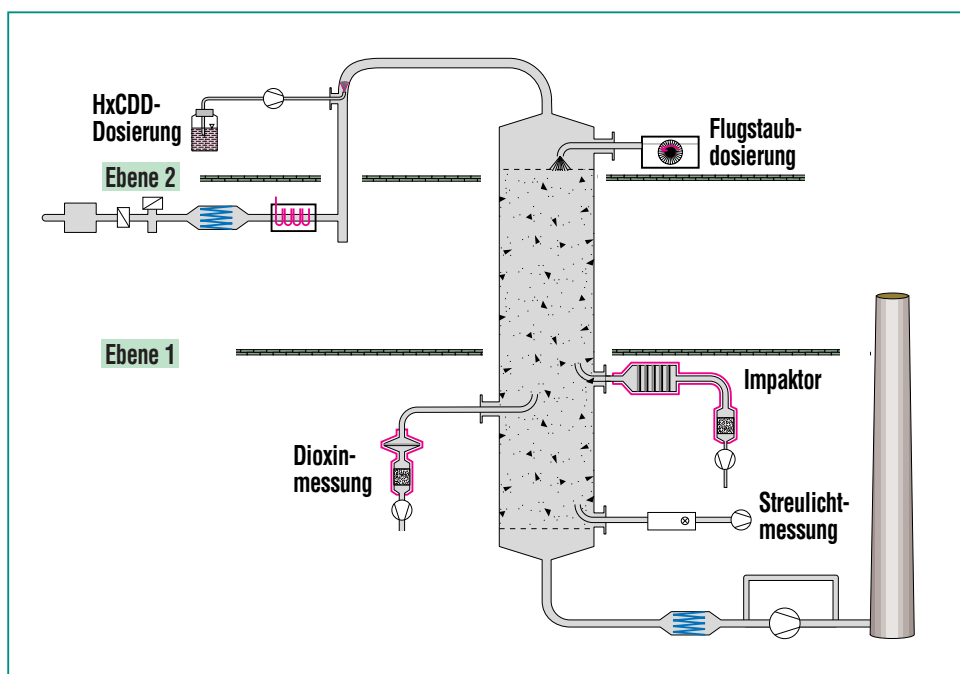


Abb. 8: Fließbild der Versuchsanlage AEOLA.

Verbrennungsprozess korreliert (sog. Memory-Effekt [18]).

Um diese Situation besser verstehen und handhaben zu können, wird die Gas-/Partikel-Verteilung der PCDD/F untersucht. Wegen des großen Parameterfeldes wird dazu eine Vorgehensweise gewählt, in der sowohl Grundlagenexperimente unter wohl definierten Bedingungen, als auch Untersuchungen an einer großtechnischen Müllverbrennungsanlage durchgeführt, miteinander verglichen und modelltheoretisch interpretiert werden. Die Grundlagenexperimente werden am Versuchsstand AEOLA durchgeführt. Mit dieser Technikumsanlage (Abb. 8) ist es möglich, verschiedene Volumenströme an Luft bzw. Rauchgas aus einer Leichtölfeuerung einzustellen. Die Versuche können in einem Temperaturbereich zwi-

schen 25 °C und 200 °C durchgeführt werden. In den Versuchen wird eine definierte Menge an Staub und eine Hexanlösung eines nicht-toxischen Hexachlordibenzodioxins (HxCDD) in einen Trägergasstrom aus Luft bzw. Rauchgas eindosiert. Die Staubdosierung wird mittels einer

Streulichtmessung überwacht. Die eindosierte Dioxinmenge kann aus der kontinuierlichen Messung der Hexankonzentration durch Flammenionisationsdetektor berechnet werden. Die sich nach einer bekannten Aufenthaltszeit einstellende Gas-/Partikel-Verteilung des HxCDD wird in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen.

Das partikelgebundene Dioxin wird durch Glasfaserfilter oder Impaktoren abgeschieden. Der flüchtige Anteil wird an XAD-Harz adsorbiert. Das Dioxin wird durch Extraktion aus dem Staub bzw. dem XAD-Harz isoliert und der Extrakt wird durch Säulenchromatographie gereinigt. Das Dioxin wird dann im Gaschromatographen mit Elektroneneinfangdetektor quantifiziert.

Abb. 9 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Gasphasenkonzentration des verwendeten Referenzdioxins HxCDD in Gegenwart von resuspendiertem TAMARA-Flugstaub. Während bei 135 °C das Referenzdioxin fast ausschließlich in der Gas-

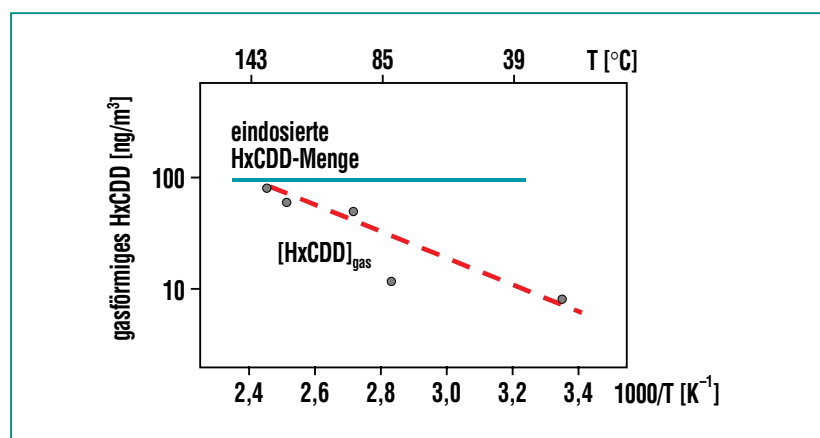


Abb. 9: Abhängigkeit des gasförmigen Anteils von Hexachlordibenzodioxin von der Temperatur in Gegenwart von resuspendiertem TAMARA-Flugstaub.

phase vorliegt, nimmt der partikelförmige Anteil bei 25 °C bis auf über 90 % zu. In weiteren Experimenten wird der Einfluss der chemischen Zusammensetzung des Flugstaubes näher untersucht, um anhand der gewonnenen Daten optimale Bedingungen für die Einbindung der PCDD/F in die Partikelphase zu erreichen.

Aerosolbildung und Aerosolminderung in Wäschern

Trotz der Anwendung von Partikelfiltern kann im Bereich der Gaswäscher eine Aerosolemission auftreten, die zur Überschreitung der Emissionsgrenzwerte führt. Diese ist auf unzureichende Abscheidung der Partikelfilter im Feinstpartikelbereich [18] oder auf die sekundäre Bildung von Aerosolen in Wäschern [19] zurückzuführen. Um einfache Abscheider für diese Aerosole zu entwickeln, werden Laboruntersuchungen zum Partikelwachstum von Müllverbrennungsflugaschen in Wäschern sowie zur Rückhaltung der angewachsenen Partikeln mit einem Aerosolabscheidesystem im Technikumsmaßstab durchgeführt.

In einem Strömungsreaktor wurden Flugaschepartikeln aus der TAMARA-Anlage mittels eines Bürstendosierers in trockene Luft dispergiert. Bei Erhöhung der relativen Feuchte im Reaktor bis zu einem Wert von ca. 65 % r.F. wird keine Änderung der Größenverteilung der Flugaschepartikeln beobachtet. Erhöht man die relative Feuchte weiter, wachsen die Partikeln an und die Verteilungsbreite wird kleiner. Das beobach-

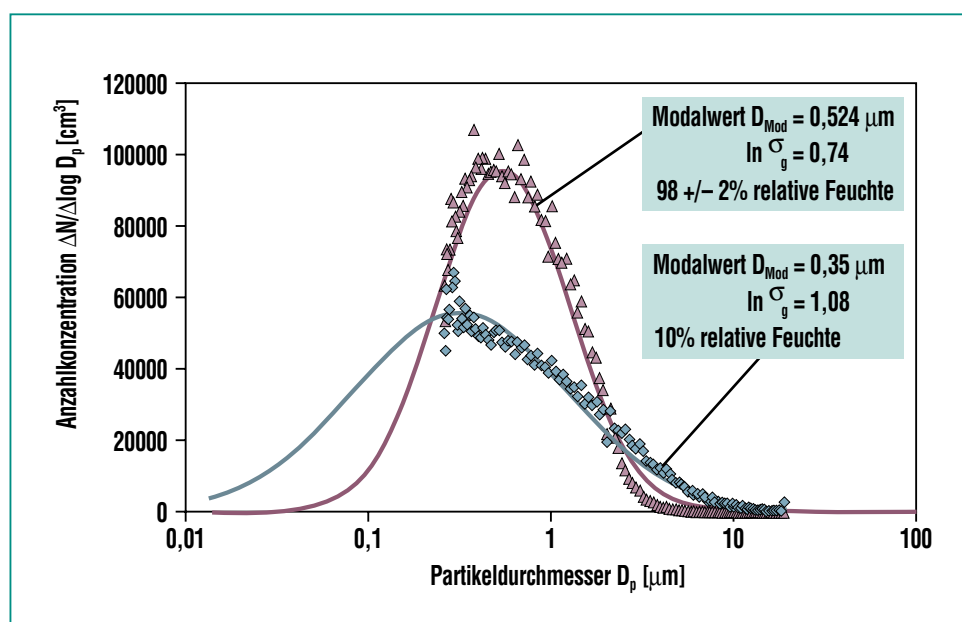


Abb. 10: Partikelgrößenverteilung redispergierter TAMARA-Flugasche bei niedriger und bei hoher relativer Luftfeuchtigkeit (Messung mit Streulichtanalysator).

tete Partikelwachstum der Flugaschepartikeln ist kleiner als das Wachstum der Natriumsulfatpartikeln in Abb. 6. Bei einer relativen Feuchte von $98 \pm 2\%$ beträgt das maximale Partikelwachstum etwa einen Faktor 1,7. Der Effekt der Partikelvergrößerung kann trotzdem zur Abscheidung von Flugaschepartikeln mit einem Aerosolabscheider genutzt werden. Der prinzipielle Aufbau dieses Abscheidesystems ist in Abb. 11 dargestellt.

Nach dem Vorabscheider wird durch die Eindüsung feiner Flüssigkeitstropfen mittels einer Zweistoffdüse ein Partikelwachstum eingeleitet. Das angewachsene Partikelkollektiv durchströmt den Abscheider (Agglomerator-Packung) vertikal von unten nach oben. Die Packung wird zur Abreinigung mit Wasser geflutet. Dazu dient eine Einstoffdüse, die

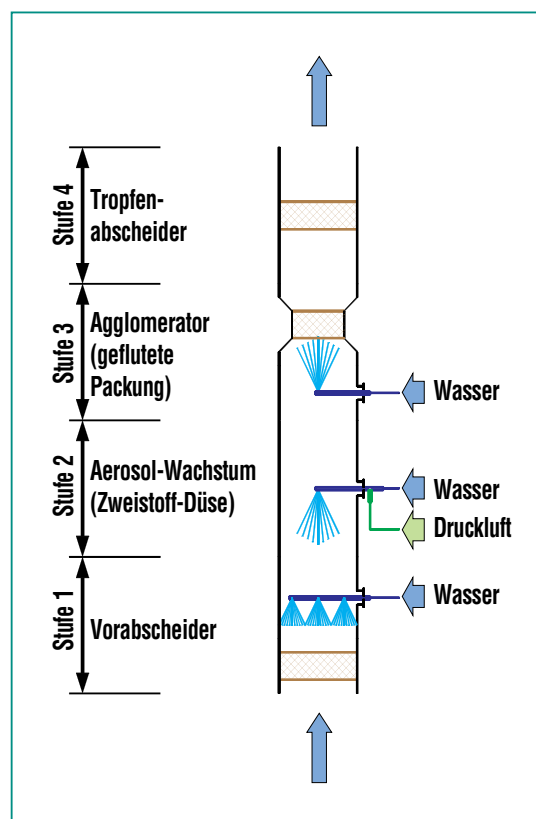


Abb. 11: Aerosolabscheidesystem.

direkt unterhalb der Packung angeordnet ist. Nach der Agglomerator-Packung ist ein Tropfenabscheider eingebaut, der die von der Strömung mitgerissenen Tropfen zurückhält. Erste Untersuchungen mit redispergiertem TAMARA-Flugstaub zeigen, je nach Betriebsbedingungen, Abscheidegrade im Bereich von 90 bis 98%. Im Betrieb mit Flutung wurde über die gesamte Versuchsdauer ein konstanter Druckverlust der Agglomerator-Packung von ca. 20 mbar gemessen. Zur Beurteilung des Langzeitverhaltens sind weitere Untersuchungen mit einer mobilen Aerosolabscheideanlage im Rahmen eines vom Land Baden-Württemberg geförderten Verbundvorhabens geplant.

Zusammenfassung

Die Emission von Aerosolen bei Verbrennung von Abfällen und Biomasse soll durch die Optimierung der Verbrennungstechnik

sowie durch kostengünstige Abgasreinigungsverfahren vermindert werden. Hierzu müssen die Bildungsmechanismen der Verbrennungsaerosole, deren heterogene Reaktionen und Umwandlung in der Verbrennungsanlage und der Abgasreinigungsanlage experimentell untersucht werden und Modellrechnungen zur quantitativen Beschreibung entwickelt werden.

Um integrierte Verfahren zur Minderung von PCDD/F auszulegen werden die Parameter aufgeklärt, die zur Bildung und Umwandlung von Dioxinen in technischen Verbrennungsanlagen führen. Eine Modellrechnung zum Partikelwachstum in Wäschern wurde entwickelt und durch Vergleich mit experimentellen Daten validiert. Zur Abscheidung von Feinstpartikeln werden Aerosolabscheider untersucht, die in Wäscher integriert sind, um bessere Auslegungsgrundlagen für diese Verfahren zu erhalten.

Danksagung

Die Autoren danken Frau Eichelberger, Herrn Woletz, Herrn Mackert und Herrn Mundt für ihre engagierte technische Mitarbeit. Wir bedanken uns auch für die gute Zusammenarbeit mit den Kollegen von den Universitäten Stuttgart und Karlsruhe im Rahmen der Verbundforschung Baden-Württemberg „Zukunftsoffensive Junge Generation“ sowie für die Förderung der Landesregierung im Rahmen von BW-PLUS.

Literatur

- [1] Stichwort „Aerosole“ im VDI-Lexikon Umwelttechnik, Herausgeber: F. J. Dreyhaupt; VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf (1994) S.83 – 85.
- [2] G.D. Thurston, *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, Vol.6, No.1, S.3 – 21 (1996)
- [3] „Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22.April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft“ in Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften vom 29.6.1999, DE, L 163/41; Anhang III „Grenzwerte für Partikel“ (1999).
- [4] M. Frenklach, H. Wang „Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation“ in *Soot Formation in Combustion*, H. Bockhorn (Ed.). Springer-Verlag (1994). S. 165-192.
- [5] K.-H. Homann, *Angew.Chem* 111, 2572-2590 (1998)
- [6] E.I. Kauppinen, T.A. Pakkanen, *Environ Sci. Tech.* (1990)
- [7] G. Kasper, M. Katzer, „Problems and Approaches to measuring Nanometer size Aerosols at High Concentrations“, ESF-Workshop „High Temperature Sampling and in-situ Measurement of Nanoparticles“, Forschungszentrum Karlsruhe, May 21 and 22, 1999.
- [8] H.-R. Paur, G. Baumbach, W. Baumann, A.Dreizler, K.R.G.Hein, H.Heller, G.Kasper, M. Katzer, Th.Klingel, U.Maas, H.Mätzing, K.Schaber, H.Seifert, A.P. Weber, B.Wende, „Verfahren zur kostengünstigen Vermeidung und Verminderung von Aerosolen in Prozessen zur energetischen Nutzung von Biomasse und Abfällen“, 1. Zwischenbericht zum Verbundvorhaben (Karlsruhe, Stuttgart Oktober 1999).
- [9] G. Baumbach, H. Heller, U. Maas, T. Klingel, A. Dreizler, „Physikalische und chemische Grundlagen der Holzverbrennung und der Rauchentstehung“ in „2. Stuttgarter Holzfeuerungskolloquium am 21. September 1999 – Mit moderner Feuerungstechnik zur rauchfreien Holzverbrennung“ Universität Stuttgart, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen – Abteilung Reinhaltung der Luft Bericht 43 – 1999.
- [10] H. Mätzing, *Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6004* (1997).
- [11] W.M. Shaub, W. Tsang, *Environ. Sci. Technol.* 17, (1983) 721 - 730.
- [12] H. Vogg, L. Stieglitz, *Chemosphere* 15, (1986) 1373 - 1378.
- [13] H. Vogg, H. Hunsinger „Symposium 25 Jahre LIT, 5 Jahre TAMARA“. *Wissenschaftliche Berichte, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 5000* (1992).
- [14] H. Mätzing, *Mechanismen der PCDDIF-Bildung. Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6424* (2000).
- [15] Jiménez Leal, „Umsetzung von Kohlenwasserstoffen an Flugaschen unter besonderer Berücksichtigung der Bildung organischer Chlorverbindungen“, *Dissertation Universität Heidelberg; Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 6159* (1998).
- [16] L. Stieglitz, *Environ. Eng. Science* 15 (1998), 5 - 18.
- [17] H. Hunsinger, S. Kreis, H. Seifert, *Chemosphere* 37 (1998), 2293 - 2297.
- [18] F. Löffler, „Staubabscheider“ (1988) Georg Thieme Verlag (Stuttgart New York) ISBN 3-13-712201-5
- [19] F. Ehrler, K. Schaber, „Spontane Kondensation und Aerosolbildung“ (1997); *VDI-Wärmeatlas* (8. Auflage) Je 1 – Je 35.

Heißgasreinigung

H. Leibold, R. Mai, B. Zimmerlin, ITC

Einführung und Bezug zur Verbrennung

In Müllverbrennungsanlagen werden meist heterogene Gemische verschiedenster Abfälle verbrannt, die sich in Heizwert, Stüchtigkeit und Form unterscheiden. Sie zünden und verbrennen unterschiedlich schnell, wobei sie zunächst entgasen, verdampfen oder in kleinere Partikel aufgebrochen werden. Wie Kohle oder Holz weisen Abfälle neben dem brennbaren Anteil einen nicht brennbaren Ascheanteil auf. Im Idealfall verbrennen die organischen Bestandteile vollständig zu CO_2 und Wasserdampf, während die Asche in die Schlacke gelangt. Tatsächlich fallen jedoch Verbrennungsprodukte wie z.B. Ruß und ein Teil der Asche in Form feinsten Partikel an. Diese können Gasreaktionen katalysieren sowie in der heißen Verbrennungszone sintern, schmelzen oder verdampfen, bevor sie mit dem Rauchgas ausgetragen werden.

Bedingt durch die Inhomogenität der Reststoffe variieren Temperaturen, Gas- und Partikelkonzentrationen im Feuerraum in weiten Grenzen. Auch treten bei der Vermischung von Brenngasen und Verbrennungsluft große zeitliche und räumliche Schwankungen auf. So entstehen Gassträhnen, die zusätzlich durch die geometrische Gestaltung des Feuerraumes sowie prozesstechnische Parameter wie die Luftführung beeinflusst werden. Eine wesentliche Rolle spielt auch, ob Brandgut und Gas den Feuerraum gleich- bzw. gegensinnig, oder nach Art einer Mittelstromfeuer-

ung durchlaufen. Bei einer Rostfeuerung variieren daher die Staub- bzw. Partikelgehalte im Feuerraum zwischen einigen hundert mg/m^3 und bis zu ca. 10 g/m^3 in alten oder hochbelasteten Anlagen [1, 2].

Abgesehen von einem inert durchlaufenden Anteil können Partikel sowohl Ursache als auch Ergebnis einer unvollständigen oder inhomogenen Verbrennung sein. Abhängig von der Temperaturzone, der stofflichen Zusammensetzung sowie dem Durchmesser der Partikel fällt auch deren Wirkung unterschiedlich aus. Große Staubeilchen bewirken bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten Erosionserscheinungen an den Feuerfestmaterialien und insbesondere an den Wärmeübertragungsflächen im Kessel. Feine Partikel führen zu festen bis verschlackten Ablagerungen, die kurzfristig die Wärmenutzung beeinträchtigen und langfristig wesentlich an der Hochtemperatur-Korrosion beteiligt sind [3-5]. In Kessel und Rauchgasreinigung beeinflussen sie massiv die Bildung gasförmiger Schadstoffe [6-8]. Schließlich verursacht die Reihenschaltung mehrerer Reinigungsstufen nach der Wärmenutzung hohe Kosten.

Aus diesen Gründen werden in der thermischen Abfallbehandlung aussichtsreiche Ansätze der Heißgasfiltration verfolgt. Sie zielen darauf ab, korrosionsrelevante Stoffe unmittelbar hinter der Feuerung abzuscheiden, um metallische und keramische Komponenten von Feuerraum und Kessel zu schützen [3, 4]. Weiterhin können durch eine Partikelab-scheidung bei Temperaturen

oberhalb 600°C , Kohlenstoffgehalt und reaktive Oberfläche des Staubes wirksam abgesenkt und damit die Neubildung von Schadstoffen günstig beeinflusst werden [1, 5, 9]. Die Homogenisierung des Rauchgases und die Kombination von Partikelabscheidung mit der Schadgasreinigung sind weitere Einsatzoptionen von Heißgasfiltern [10-12].

Stäube

Die im Verbrennungsprozess entstehenden Stäube lassen sich nach ihrem Aussehen wie folgt einteilen [13]:

- (a) erstarrte Schmelztröpfchen
- (b) Kristallite
- (c) polykristalline Aggregate
- (d) amorphe Partikel
- (e) unvollständig verbrannte Partikel

Mehr als die Hälfte besteht aus großen unregelmäßig geformten Partikeln, die einzeln oder als Agglomerate vorliegen. Wichtig sind glasartige Kügelchen und Kristallite, da sie Durchmesser bis weit in den Submikronbereich aufweisen und deshalb über eine große spezifische Oberfläche verfügen. Dem Anteil der unvollständig verbrannten Partikel kommt im Zusammenhang mit der Bildung von Dioxinen und Furanen eine besondere Bedeutung zu [9].

Wegen der großen Zahl unterschiedlicher Eingangsstoffe und möglicher Wechselwirkungen während der Verbrennung können Flugstäube zahlreiche Verbindungen enthalten, die häufig in Form von Gemischen vorliegen.

Die typische Elementzusammensetzung solcher Flugstäube zeigt Tab. 1, wobei Sulfate und Chloride einen wesentlichen Einfluss auf die Schadstoffbildung und auf Korrosionsprozesse haben.

Eine weitere wichtige, von der chemischen Zusammensetzung abhängige Eigenschaft des Flugstaubes ist seine Erweichungstemperatur. Sie kennzeichnet den Übergang von einem filtertechnisch unkritischen, leicht abzureinigenden Staub zu einem kritischen, klebrigen bzw. backenden Staub, der extrem hohe Anforderungen an Filtermaterial und Abreinigungstechnik stellt. Dies verdeutlicht die Bildfolge (Abb. 1) von Staubschichten aus TAMARA, die durch die Wechselwirkung von Flugstaub und Rauchgas bei Temperaturen zwischen 200 °C und 550 °C auf der Oberfläche von kornkeramischen Filterkerzen gebildet wurden. Für 200 °C ist eine hochporöse Staubschicht aus ku-

gelförmigen Submikron-Partikeln zu erkennen, die sich problemlos von der Filterkeramik abreinigen lässt. Der Übergang auf 300 °C führte zu einer drastischen Änderung im Aufbau der Staubschicht. Die kornkeramische Filtermembran war mit einer schmelzflüssigen Phase überzogen, mit darin

eingelagerten morphologisch sehr unterschiedlichen Partikeln. Diese Vorgänge setzten sich bei einer Filtrationstemperatur von 400 °C fort, wobei lokal Anreicherungen an verschiedenen, kristallinen Phasen auftraten. Eine aufgeschmolzene Phase lag allerdings unter diesen Bedingungen nicht

Elementzusammensetzung von Flugstaub		
SiO ₂	%	28,10
CaO	%	26,70
Al ₂ O ₃	%	14,00
SO ₃	%	7,25
FE ₂ O ₃	%	5,20
K ₂ O	%	3,72
Cl	%	2,51
ZnO	%	2,42
PO ₃	%	2,36
Cr ₂ O ₃	%	0,64
Sonstige	%	7,10

Tab. 1: Typische Elementzusammensetzung von Flugstäuben [5]

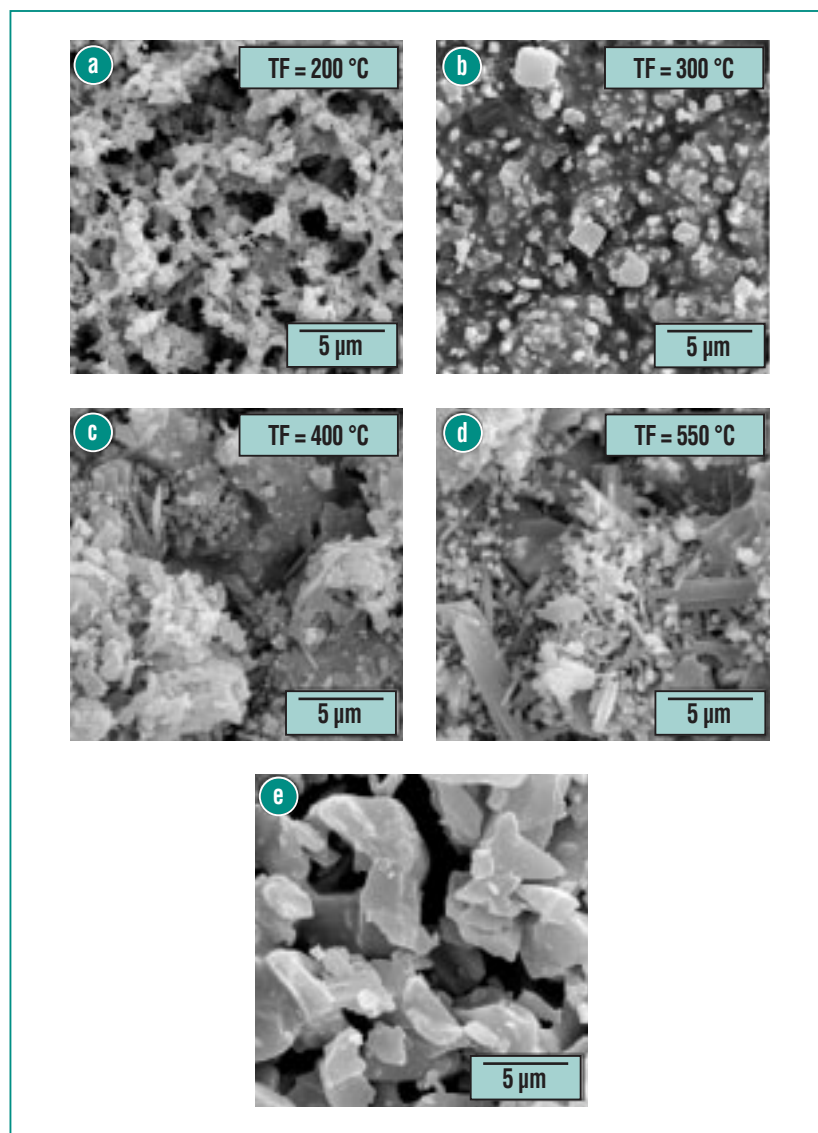


Abb. 1: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von Flugstaubpartikeln oberhalb Feuerraum TAMARA, abgeschieden bei Rauchgastemperaturen zwischen 200 °C und 550 °C auf kornkeramischen Filterkerzen (a, b, c, d). Zum Vergleich ist eine neuwertige Oberfläche der verwendeten Filterkerzen gegenüber gestellt (e).

mehr vor. Bei 550 °C bestanden die Anlagerungen überwiegend aus nadel- und plattenförmigen Kristalliten sowie aus kugelförmigen Partikeln und kleinsten Agglomeraten. Da die Größe der Kristallite deutlich über dem Durchmesser der Flugstaubpartikel lag, muss davon ausgegangen werden, dass diese Kristallite direkt auf der Filteroberfläche gebildet wurden.

Die thermischen Eigenschaften eines so komplexen Stoff- und Phasengemisches wie Flugstaub sind nur experimentell zugänglich. Eine Methode, die im ITC-TAB verfolgt wird, basiert auf Differential Scanning Calorimetry (DSC). DSC erfasst sehr empfindlich Enthalpieänderungen auf Grund von Phasenumwandlungen und chemischen Reaktionen. Beim einmaligen Aufheizen werden sowohl irreversible Prozesse

wie die Abgabe von gebundenem Wasser, Modifikationsänderungen und das Abdampfen flüchtiger Komponenten als auch reversible Vorgänge wie Schmelzen oder Modifikationsänderungen erfasst. Beim erneuten Aufheizen bzw. beim Abkühlen ergeben sich i.d.R. nur noch reversible Änderungen. Hierdurch können kritische Temperaturbereiche, die durch das Schmelzen einzelner Phasen bedingt sind, auch bei einem so komplexen Stoffsystem wie Flugstaub eingegrenzt werden. Abb. 2 zeigt beispielhaft eine DSC-Analyse für einen Kesselstaub aus TAMARA. In Kombination mit Thermogravimetrie und Gasanalyse ist eine genauere Aufschlüsselung der thermisch induzierten Prozesse im Flugstaub möglich. Diese Analysen sind Gegenstand aktueller Arbeiten.

Aus den bisher bekannten Zusammenhängen lässt sich ablei-

ten, dass eine Heißgasreinigung an einer thermischen Abfallverbrennung, unabhängig von der Verbrennungsführung, in jedem Fall oberhalb einer Mindesttemperatur von ca. 500 °C betrieben werden sollte [8]. Für die Wahl der maximalen Temperatur müssen zusätzliche Gesichtspunkte wie Erweichungstemperatur der Flugstäube, Prozessdampfparameter, Flüchtigkeit von Alkali- und Schwermetallhalogeniden, Bildungs-/Zerstörungsbedingungen für organische Schadgase und die Rückwirkung auf die Vermischung von Brenngasen und Verbrennungsluft berücksichtigt werden. Wegen der korrosiven Rauchgase kommen für Abfallverbrennungsanlagen nur keramische Filtersysteme in Frage.

Keramische Filtersysteme

Keramische Filtersysteme finden bereits in diversen Industriezweigen Anwendung, z.B. zur Katalysatorrückgewinnung in Crack-Prozessen, sowie vereinzelt auch bei der thermischen Abfallbehandlung [1, 14, 15]. So werden in den Feststoffverbrennungsanlagen der HDB bereits seit den 70-er Jahren keramische Filterkerzen eingesetzt. Forciert wird die Entwicklung vor allem aber durch die modernen, druckbetriebenen Kohleverstromungsverfahren mit kombiniertem Gas- und Dampfturbinen-Kreislauf (IGCC und PFBC)¹⁾, mit den größten derzeit betriebenen Heißgasfiltern (vgl. Abb. 3 und 4). Hier muss

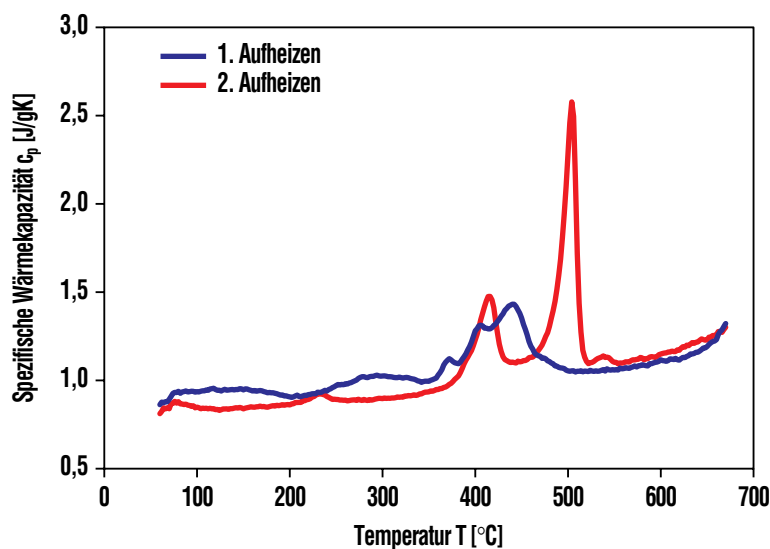


Abb. 2: Differential Scanning Calorimetry an einem Kesselstaub aus TAMARA. Die Peaks im Verlauf der spezifischen Wärmekapazität werden hervorgerufen durch Vorgänge wie Schmelzen, Verdampfen sowie chemische Umwandlungsprozesse. Anhand der Peaks beim zweiten Aufheizen können die möglichen Erweichungsbereiche des Staubes eingegrenzt werden.

¹⁾ Integrated Gasification Combined Cycle, Druckvergasung bis 40 bar und 1000 °C; Pressurized Fluidized Bed Combustion, Druckwirbelschichtverbrennung bis 16 bar und 850 °C

zum Schutz von leistungsstarken Gasturbinen mit hohem Wirkungsgrad das Prozessgas vorher gefiltert werden [15]. Grobe Partikeln oberhalb von $5\text{ }\mu\text{m}$ müssen vollständig abgetrennt werden, da sie die Gasturbine durch Erosion gefährden. Feinere Partikeln können auf der Gasturbine einen Belag bilden, der zu Korrosion führt. Gasturbinenhersteller fordern daher Reingasstaubgehalte von weniger als 5 mg/Nm^3 . Dies können heutige Filtersysteme bereits garantieren. Emissionsauflagen wie in der 17. BImSchV (30 mg/Nm^3 Staubgehalt) erfüllen sie da ganz nebenbei. Die hohen Abscheideleistungen müssen die Filtersysteme allerdings für 10 000 Betriebsstunden, wie in der Kraftwerkstechnik auch für andere Anlagenkomponenten üblich, aufrecht erhalten. Diese Langzeitstabilität kann aus vielerlei Gründen nicht garantiert

werden. Daher werden keramische Heißgasfilter in den Kraftwerken derzeit nur bei moderaten Prozessbedingungen eingesetzt.

In hängender Anordnung werden die Filterkerzen von außen nach innen durchströmt. Mit fortschreitender Zeit baut sich auf der Kerzenoberfläche ein Staubkuchen auf, der den Durchströmungswiderstand erhöht. Deshalb müssen die Filterelemente zyklisch abgereinigt werden. Für die Abreinigung werden die einzelnen Filterkerzen im großtechnischen Maßstab zu Reihen oder Clustern zusammengefasst. Durch einen Druckimpuls wird die Strömungsrichtung für eine Kerzengruppe ohne Unterbrechung des Filtrationsbetriebes kurzzeitig umgekehrt und dadurch der Staubkuchen abgeworfen. Die übrigen Kerzengruppen filtern zwischenzeitlich den gesamten Volu-



Abb. 3: Heißgasfilter für die Kohledruckvergasungsanlage in Buggenum, NL, bei der Montage²⁾. Höhe 25 m, Durchmesser 4,2 m, Gewicht 90 t, Durchsatz ca. 25.000 Bm^3/h bei $240\text{ }^\circ\text{C}$ und 22 bar entspricht 300.000 Nm^3/h .

menstrom. Das aus der konventionellen Entstaubungstechnik adaptierte Jet-Pulse-Abreinigungsverfahren ist jedoch für die starren, dickwandigen Filterkerzen nur bedingt geeignet. Eine Weiterentwicklung des Jet-Pulse-

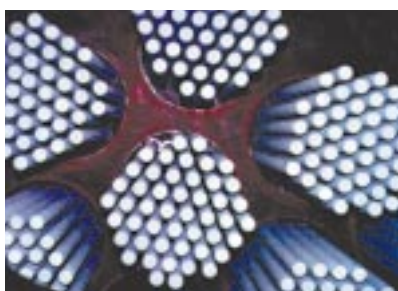


Abb. 4: Blick von unten auf die Filterelementanordnung im Heißgasfilter Buggenum²⁾. Insgesamt 864 Filterelemente, ausgeführt als einseitig geschlossene Filterkerzen, sind in 18 Gruppen zu je 48 Stück zusammengefasst. Die starren, selbsttragenden Filterelemente haben standardmäßig einen Durchmesser von 60 mm und eine Länge von 1,5 m.

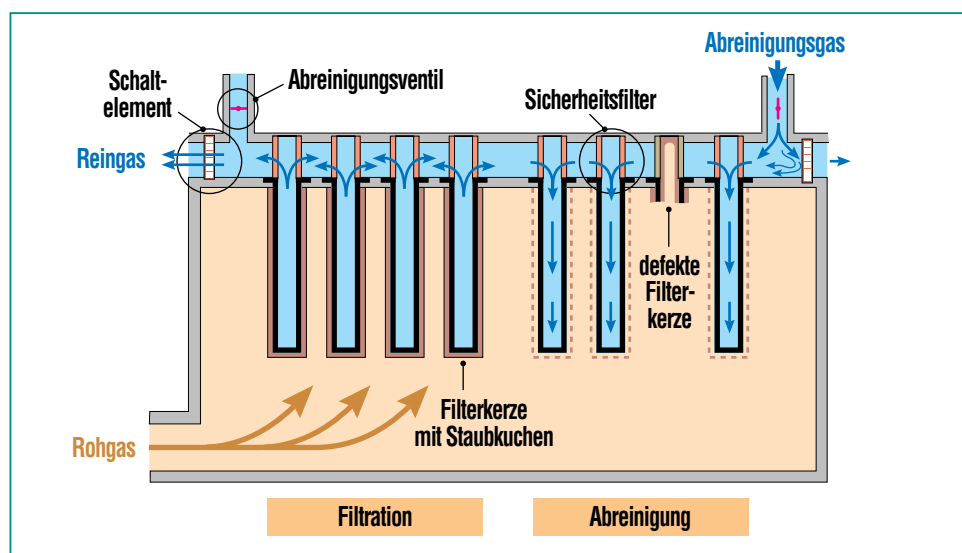


Abb. 5: Coupled-Pressure-Pulse-Abreinigungsverfahren. Durch das im Forschungszentrum entwickelte Abreinigungsverfahren für Filterkerzen können Hochtemperatur-Prozesse selbst beim Bruch einer Filterkerze ohne Funktionsbeeinträchtigung weiterbetrieben werden.

²⁾ Bilder mit freundlicher Genehmigung der Firma USF SCHUMACHER, Crailsheim

Abreinigungsverfahrens ist das Coupled-Pressure-Pulse-(CPP)-Abreinigungsverfahren (vgl. Abb. 5). Dieses speziell auf die Filterkerzen hin optimierte Abreinigungsverfahren wird derzeit im Forschungszentrum im Rahmen eines TTM-Projektes zur Marktreife gebracht [16, 17].

Der Überdruck in der Filterkerze für die Ablösung des Filterkuchens wird hierbei nicht über einen Freistrahle, sondern durch direkte Kopplung der Abreinigungseinheit mit einer oder mehreren Filterkerzen aufgebracht. Hierdurch wird nur ein geringer Vordruck von 1-2 bar für das Abreinigungsgas benötigt. Der Vorteil des geringen Vordrucks wird insbesondere bei druckaufgeladenen Verfahren deutlich, da beim Jet-Pulse-Verfahren etwa das 2-fache des Systemdrucks als Vordruck nötig wird. Weiterhin kann die Abreinigungsintensität für problematische Stäube (z.B. klebrige Stäube aus der thermischen Abfallbehandlung) gesteigert werden. Zwischen der Abreinigungseinrichtung und den Filterkerzen kann ein Sicherheits-

filter integriert werden. Dieses wird bei den oben erwähnten Kohleverstromungsverfahren zum Schutz der Gasturbine zwingend gefordert. Zur Bereitstellung des kurzzeitigen hohen Massenstroms an Abreinigungsgas müssen die Abreinigungsleitungen und -ventile entsprechend groß dimensioniert sein (Nennweite 80-250 mm) und innerhalb von 200 ms öffnen und schließen. Die Freischaltung des Abreinigungsgasstroms bzw. des Reingasstroms im Filtrationsfall ermöglicht ein strömungsdynamisches Schaltelement. Dieses passiv wirkende Kanalsystem ist so ausgelegt, dass es bei der Filtration nur einen geringen Druckverlust aufweist, bei der Abreinigung jedoch den Verlust an Abreinigungsgas begrenzt.

Eine weitere entscheidende Rolle für die Abreinigung spielt der Druckaufbau. Um den Staubkuchen vollständig abzureinigen, sollte der Druckaufbau am Staubkuchen möglichst schnell erfolgen. Dies ist bei den beiden bisher genannten Verfahren (Jet-Pulse und CPP) aufgrund der

starken Dämpfung des Drucksignals beim Durchgang durch das Filtermedium jedoch nicht der Fall [18] (vgl. Abb. 6 links).

Für Hochtemperaturanwendungen und starre Filtermaterialien weitaus besser geeignet ist dagegen ein im ITC-TAB neu entwickeltes Abreinigungsverfahren – die rohgasseitige Druckabsenkung [19, 20] (vgl. Abb. 6 rechts). Dabei wird Wasser unter hohem Druck kurzzeitig auf der Rohgasseite des Filterbehälters sehr fein zerstäubt [21]. Bei Prozesstemperaturen bis 850 °C verdampft das eingesprühte Wasser innerhalb weniger Millisekunden [22]. Die zur Verdampfung notwendige Energie wird dabei vollständig dem heißen Prozessgas entnommen. Dies führt zur schlagartigen Abkühlung des Gases, verbunden mit einer Druckabsenkung. Sie überkompensiert die Druckerhöhung durch den zusätzlichen Wasserdampfanteil im Prozessgas. Dieses Abreinigungsverfahren erlaubt neben der Abreinigung von durchströmten Filterelementen auch die Abreinigung von nicht durchströmbaren Flä-

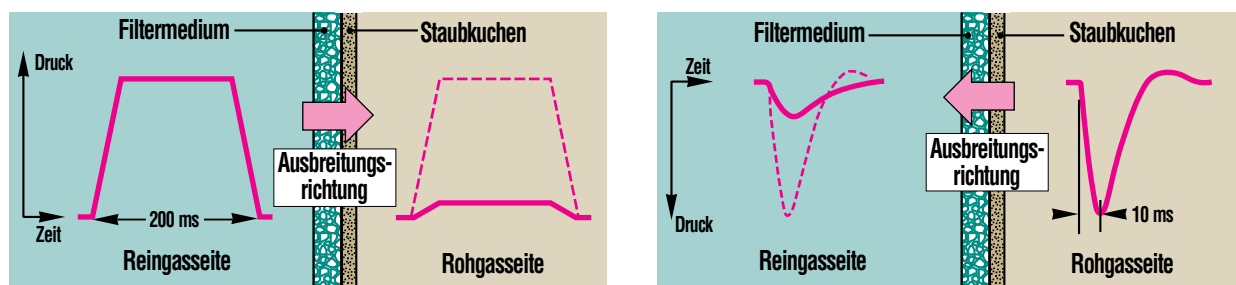


Abb. 6: Schematischer Vergleich der Drucksignale beim Jet-Pulse- und CPP-Verfahren (links) und bei der Abreinigung durch rohgasseitige Druckabsenkung (rechts). Die Ausbreitungsrichtung der Druckstörung ist bei den beiden Abreinigungsverfahren entgegengesetzt. Im Gegensatz zum stark gedämpften Druckimpuls beim Jet-Pulse-Verfahren läuft bei der neuentwickelten rohgasseitigen Druckabsenkung eine Expansionswelle ungedämpft in den Staubkuchen.

chen wie z.B. staubbelegte Wärmetauscherrohre im Abhitzekeessel oder die Feuerraumauskleidung selbst.

Derzeit werden Keramikfilter überwiegend in Form von Filterkerzen ausgeführt (vgl. Abb. 4). Sie werden als selbsttragende Strukturen aus keramischen Fasergeweben, direkt aus Fasersuspensionen oder als Kornkeramik hergestellt. Gängige Faserkerzen (Aluminosilikatfasern) weisen zwar sehr gute Abscheideeigenschaften auf, sind aber mechanisch sehr empfindlich. Robuster sind die, durch Stampfen oder Extrudieren gefertigten, kornkeramischen Filterkerzen auf Basis von aluminosilikatisch gebundenen SiC-Körnern. Die eigentliche Filtrationsschicht besteht aus einer dünnen korn- oder faserkeramischen Beschichtung von 50-200 µm, die auf einer dickwandigen Tragstruktur aufgebracht wird. Zunehmende Bedeutung gewinnen andere Fil-

terformen. Wabenkörper (Abb. 7a) werden z.B. als Dieseldieselrußfilter in Kraftfahrzeugen eingesetzt. Die Enden der Strömungskanäle sind beidseitig abwechselnd verschlossen und die porösen Kanalwände dienen als Filterschicht. Im Vergleich zu den Filterkerzen ermöglichen sie größere Filterflächen bei geringem Bauvolumen. In die gleiche Richtung zielen Crossflow-Elemente (Abb. 7b), bei denen staubhaltiges und gereinigtes Gas im rechten Winkel, über Kreuz, geführt werden. Problematisch ist für beide Filterformen bisher die Abreinigung der staubbelegten Kanäle, auch werden nur geringe Staubkonzentrationen beherrscht.

Filterkeramik

Im Gegensatz zu sogenannten Speicherfiltern, bei denen die Staubabscheidung überwiegend im Filtermedium erfolgt (Tiefenfiltration), wird bei den regenerierba-

ren Filtermedien eine zyklische, oberflächennahe Staubschichtbildung angestrebt (Oberflächenfiltration). Als Materialien für keramische Filtermedien werden die auch im Feuerfestbereich verwendeten Ausgangsstoffe Aluminosilikat, Cordierit, SiC, Al_2O_3 , Spinell, ZrO_2 etc. eingesetzt. Die Einsatztemperaturen gebräuchlicher Filterkerzen reichen derzeit bis ca. 850 °C, während die angestrebten Anwendungstemperaturen bis zu ca. 1400 °C betragen. Werkstofftechnisch aktuelle Problemfelder dieser Kerzen sind die Erweichung der Bindermaterialien oberhalb ca. 800 °C, die Korrosion durch Alkalien, Wasserdampf, etc. sowie die Oxidation von SiC-Keramiken. Den drastischen Einfluss der Betriebsbedingungen zeigen Untersuchungen an kornkeramischen SiC-Filterkerzen, bei denen als Folge von betriebsbedingter Korrosion und mechanischer Beanspruchung die Festigkeit gegenüber dem neuwertigen Zustand um bis zu 40 % abnahm.

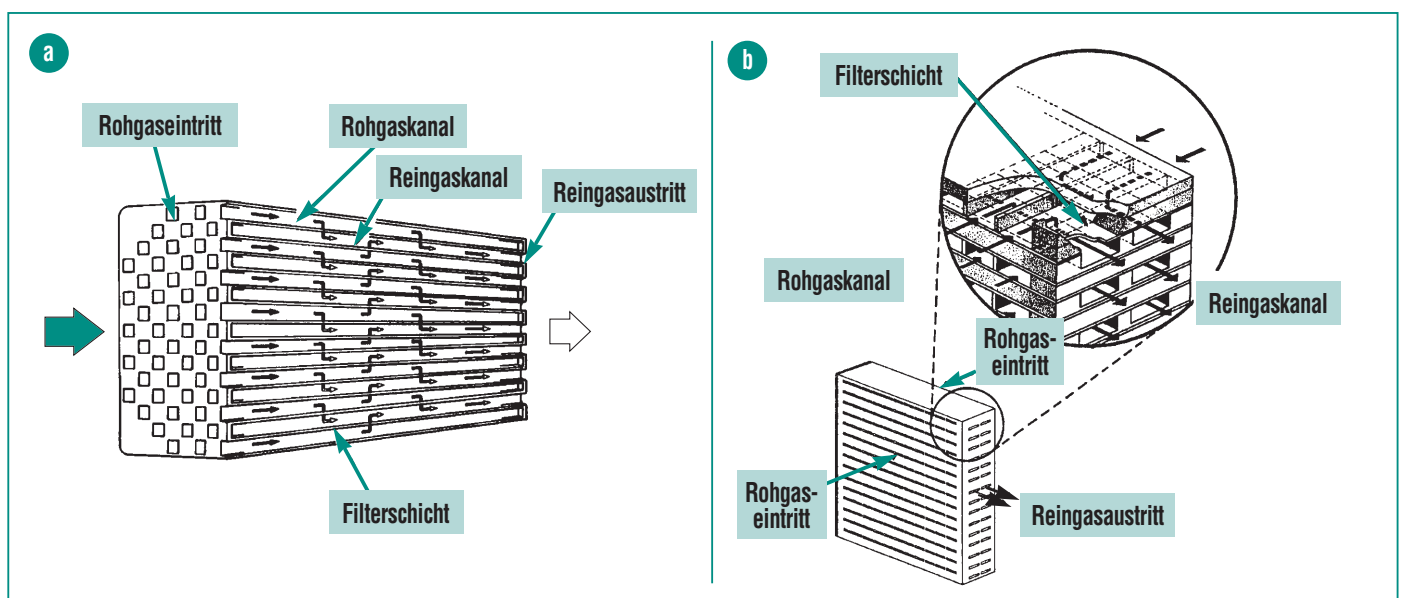


Abb. 7: Schematische Darstellung Wabenkörper (a) und Crossflow-Element (b).

Darüber hinaus resultieren werkstofftechnische Problemfelder aus dem Filterbetrieb. Wegen ihrer Unempfindlichkeit gegen Thermowechsel- und Thermoschockbeanspruchung bei der Abreinigung werden derzeit fast ausschließlich die vergleichsweise teuren SiC-Filterkeramiken eingesetzt. Die für viele Anwendungen günstigeren oxidkeramischen Materialien werden nicht zuletzt durch die im ITC-TAB entwickelten Abreinigungsverfahren und der damit verbundenen reduzierten thermischen Beanspruchung interessant.

Nicht nur werkstofftechnisch, sondern auch im strukturellen Aufbau der Filter besteht ein immenser Optimierungsbedarf. Die gebräuchlichen dickwandigen Filterkerzen weisen bei typischen Porositäten um 60 % einen unverhältnismäßig hohen Druckverlust auf. Der damit verbundene hohe Energiebedarf, verschärft

durch die vergleichsweise geringe Filterfläche je Kerze, begrenzt Anwendungen bei Umgebungsdruck bisher auf kleine Anlagen. Problematisch ist auch die Verstopfungsempfindlichkeit der keramischen Filterwerkstoffe gegenüber Feinstäuben, die typisch sind für Hochtemperaturprozesse. Ein weiteres Problem stellen klebrige bzw. backende – d.h. schwer abreinigbare – Stäube dar.

Durch die gegenläufige Wirkung der entscheidenden Strukturparameter Porosität, Porengröße, Korngröße bzw. Faserdurchmesser und Wandstärke auf die filter- und materialtechnischen Zielgrößen, sind die gestellten Anforderungen mit einem einheitlichen Material nicht zu erfüllen. So nehmen z.B. mit abnehmender Wandstärke Permeabilität und Abreinigbarkeit zu. Mit abnehmender Wandstärke wird allerdings auch der Abscheidegrad re-

duziert und die Bruchanfälligkeit erhöht. Der Ausweg besteht im mehrschichtigen Gefügebau mit einer Funktionstrennung der einzelnen Schichten. Zur Rohgasseite hin wird eine hinsichtlich Abscheidegrad und Abreinigbarkeit optimierte Filtermembran aufgebracht. Aufgabe dieser Membran ist die oberflächennahe Abscheidung der Staubpartikeln, bei minimalen Haftkräften zwischen Membran und Staub. Die reingasseitige Schicht hat im wesentlichen tragende Funktion und sollte bei ausreichender Festigkeit möglichst wenig zum Gesamtdruckverlust der Keramik beitragen. Diese Stützstruktur muss deshalb eine möglichst grobe und offenporige Keramik sein. Von einschneidender Bedeutung für das Betriebsverhalten der Filterkeramik ist ein homogenes Gefüge, d.h. gleichförmig dicke Schichten und vor allem eine enge Poren- und Korngrößenverteilung. So können lokale Inhomogenitäten zu einer drastischen Verschlechterung im Betriebsverhalten führen und damit die Filterkeramik unbrauchbar machen. Den Einfluss von Gefügestruktur und Membrandicke auf das Filtrationsverhalten keramischer Filtermembranen zeigt die Abb. 8. Untersucht wurden unterschiedlich dicke Membranen aus einer konventionellen Mullit-Keramik (Korngröße 30 μm , breite Porengrößenverteilung), sowie der Prototyp einer feinkörnigeren Keramikmembran mit besonders enger Porengrößenverteilung. Ermittelt wurde die Druckverlustzunahme als Funktion der Beladung mit BaSO_4 -Feinstaub.

Angestrebt wird eine mit der Beladung linear ansteigende Druck-

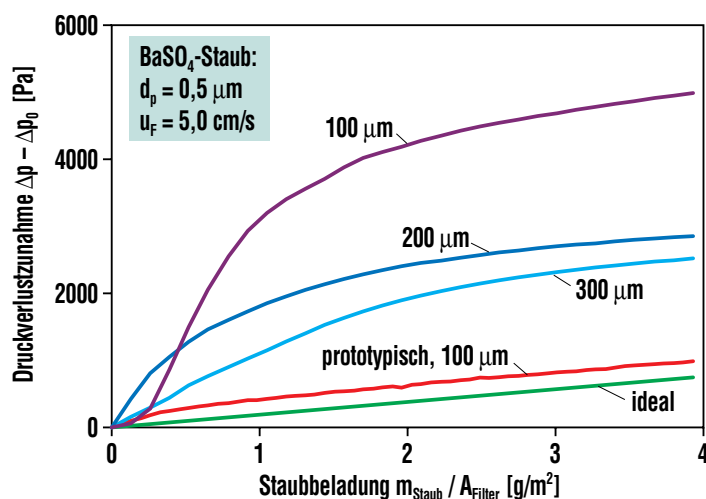


Abb. 8: Druckverlustzunahme als Funktion der Staubbeladung für konventionelle Filtermembranen mit unterschiedlicher Dicke, sowie für einen feinkörnigeren Membran-Prototyp. Zum Vergleich ist die Druckverlustzunahme allein durch die anwachsende Staubschichtdicke dargestellt (ideale Oberflächenfiltration).

verlustzunahme. Die gemessenen Druckverlustzunahmen weichen jedoch vom linearen Verlauf für ideale Oberflächenfiltration mehr oder weniger stark ab, weil die Feinstaubabscheidung erst nach und nach aus der Keramikstruktur an die Oberfläche verlagert wird. Besonders auf dünnen Membranen aus konventioneller Keramik wird erst bei sehr hoher Feinstaubbelastung ein geschlossener Staubkuchen gebildet, der in der Folge die Filtration übernimmt. Schließlich nähern sich alle Kurvensteigungen mit zunehmender Beladung asymptotisch etwa der Steigung für ideale Oberflächenfiltration. Bei dem Prototyp der Keramikmembran mit enger Porengrößenverteilung wird die Feinstaubabscheidung sehr viel rascher aus der Keramikstruktur an die Oberfläche verlagert, so dass die Druckverlustzunahme dem idealen Verlauf sehr nahe kommt. Sie zeigt bereits bei geringer Membrandicke eine drastisch reduzierte Verstopfungsanfälligkeit.

Insbesondere bei klebrigen und backenden Stäuben bieten nanoskalige Membranen einen erfolgversprechenden Ansatz, um das Filtrationsverhalten keramischer Hochtemperatur-Filterwerkstoffe entscheidend zu verbessern [23, 24] (Abb. 9). Bei Temperaturen bis 600 °C konnte für derart beschichtete Filter eine Abreinigung von klebrigen Stäuben erzielt werden, was mit den bisher untersuchten kommerziellen Filtern nicht möglich war. Einen vielversprechenden Ansatz für Tragstrukturen stellen Schaumkeramiken dar. Gerade mit Blick auf Anwendungen bei Umgebungs-

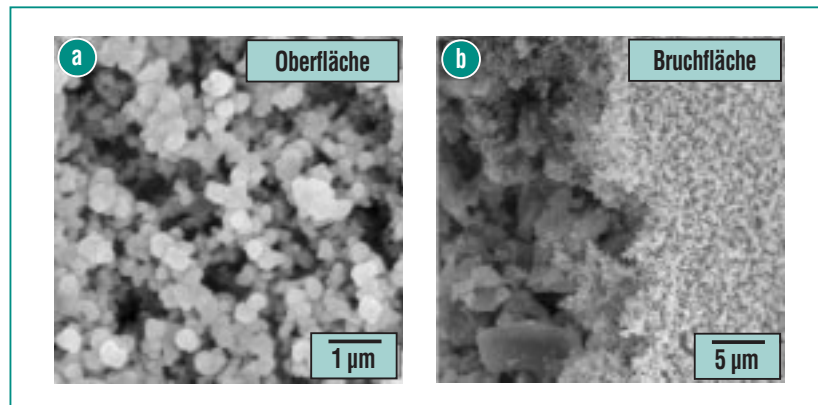


Abb. 9: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von der Oberfläche (a) und der Bruchfläche (b) einer hochporösen Filtermembran aus Al_2O_3 -Nanopartikeln, aufgebracht auf eine Standardfilterkeramik (SiC-Tragstruktur mit Mullit-Beschichtung).

druck lassen diese wie Kunststoffschäume aufgebauten Keramiken eine erhebliche Reduzierung des Druckverlustes zu.

Zusammenfassung und Ausblick

Bei der Verbrennung von Abfällen entstehen aus dem Brandgut sowie im Verlauf des Verbrennungsprozesses erhebliche Partikelmengen, die mit dem Rauchgas ausgetragen werden. Besondere Kennzeichen dieser Stäube sind niedrige Erweichungstemperaturen, ein hoher Feinpartikelanteil und, in Verbindung mit den Rauchgasen, ein hohes Korrosionspotential. Die stark schwankende und uneinheitliche Abfallzusammensetzung führt zusätzlich zu einer großen Variation in diesen Eigenschaften.

Keramische Filtersysteme bieten die Möglichkeit, den Gesamtprozess zu vereinfachen und den energetischen Wirkungsgrad zu erhöhen. Verfügbare Filterkeramiken weisen derzeit noch unwirtschaftlich hohe Druckverluste

für die bei Umgebungsdruck betriebenen Verbrennungsverfahren auf. Sie benötigen darüber hinaus in großtechnischen Anwendungen zuviel Platz. Auch ist die geforderte Langzeitstabilität wegen Verstopfungsneigung, nicht angepassten Reinigungsverfahren und Bruchempfindlichkeit noch nicht gewährleistet.

Zwei im Forschungszentrum laufende Entwicklungen zur Regenerierung von keramischen Filtersystemen führen zu einer effizienteren Abreinigung von Keramikfiltern im laufenden Betrieb, da sie speziell auf den Hochtemperaturbetrieb starrer Filtermedien abgestimmt sind. Eines davon, das CPP – Abreinigungsverfahren, befindet sich kurz vor der Markteinführung. Neu entwickelte nanostrukturierte Filtermembranen sind speziell auf die Filtration von klebrigen und backenden Stäuben ausgerichtet, die in thermischen Abfallbehandlungsanlagen bereits bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen auftreten. Begonnen wurde mit Entwicklungsarbeiten zu neuartigen

Stützstrukturen auf Basis sogenannter Schaumkeramiken. Durch einen speziellen Ferti-gungsprozess können platzspa-rende Bauformen hoher Festig-keit realisiert werden, die infolge der Schaumstruktur sehr niedrige Durchströmungswiderstände auf-weisen. Die Filter können so kon-zipiert werden, dass auch hohe Staubgehalte bewältigt werden.

Die genannten Entwicklungen er-möglichen Heißgasreinigungssy-teme, die die hohe chemische Resistenz und die Temperaturbe-ständigkeit keramischer Materia-lien vorteilhaft mit den prozess-technischen Anforderungen der thermischen Abfallbehandlung verknüpfen. Durch keramikge-rechte Bauformen und Abreini-gungsverfahren lassen sich kera-miktypische Begrenzungen infol-

ge Sprödigkeit, Bruchanfälligkeit und Empfindlichkeit gegenüber schnellem Temperaturwechsel auffangen.

Gelingt es, die dargestellten Pro-bleme zu wirtschaftlich vertretba-ren Kosten zu lösen, können die prozesstechnischen Vorteile ei-ner Heißgasreinigungsstufe, die unmittelbar hinter der Feuerung betrieben wird, genutzt werden.

Literatur

- [1] P.J. Hayes, R. Schulz, H. Leibold, B. Zimmerlin, B. O'Reilly, P. Hahn, *TRAWMAR Workshop Proceedings, September 1998, Rhodos, GR.*
- [2] N.F. Glen, J.H. Howarth, *Publication C118/88 National Engineering Laboratory, Glasgow 1988.*
- [3] J. Neumann, H.R. Kautz, *VGB Kraftwerkstechnik 77 (1997).*
- [4] M. Born, P. Seifert, *VGB Kraftwerkstechnik 76 (1996).*
- [5] A.J. Chandler et al., *Elsevier Studies in Environmental Science 67, Elsevier, 1997, ISBN 0-444-82563-0.*
- [6] W. Spiegel, *Thermische Abfallverwertung 1999, VGB-Fachtagung, 2.9.1999 Essen und 16.9.1999 Rosenheim.*
- [7] H. Hunsinger, S. Kreis, H. Seifert, *in: R. Hites (Hrsg.), DIOXIN '97, 17th Internat. Symp. on Chlorinated Dioxins, PCB and Related Compounds, Indianapolis, Ind., USA, 25.-29. August 1997.*
- [8] H. Vogg, L. Stieglitz, *Chemosphere 15 (1986).*
- [9] L. Birnbaum, U. Richers, *Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte FZKA 5639, Dezember 1995.*
- [10] W. Peukert, *in: E. Schmidt et al. (Hrsg.), High Temperature Gas Cleaning, IMVM, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, (1996).*
- [11] K. Hübner, *in: E. Schmidt et al. (Hrsg.), High Temperature Gas Cleaning, IMVM, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, (1996).*
- [12] B. A. Kwetkus, W. Egli, *in: E. Schmidt et al. (Hrsg.), High Temperature Gas Cleaning, IMVM, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, (1996).*
- [13] *Waste Programme; Waste Analysis, Sampling, Testing and Evaluation Program; Phase 1 Final draft Report prepared for Environment Canada, US EPA and the International Lead Zinc Research Organisation; unveröffentlicht, 1993.*
- [14] H. Leibold, R. Mai, B. Zimmerlin, W. Bundschuh, M. Fronhöfer, K. Schulz, A. Walch, *Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6055, Juni 1998.*
- [15] S. Mitchell, *IEACR/95, IEA Coal Research, London, UK, Juli 1997.*
- [16] R. Mai, D. Kreft, H. Leibold, H. Seifert, K. Schulz, *in: A. Dittler et al. (Hrsg.), High Temperature Gas Cleaning II, IMVM, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, (1999).*
- [17] R. Mai, D. Kreft, H. Leibold, H. Seifert, K. Schulz, *Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6319, Dezember 1999.*
- [18] R. Mai, M. Fronhöfer, H. Leibold, *in: E. Schmidt et al. (Hrsg.), High Temperature Gas Cleaning, 18.-20. September 1996, IMVM, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, (1996).*
- [19] R. Mai, H. Leibold, M. Fronhöfer, *in: F. Ebert (Hrsg.), PARTEC 98, 4th European Symposium Separation of Particles from Gases, Preprints, Nürnberg Messe GmbH, Nürnberg, 1998.*
- [20] H. Leibold, R. Mai, *Symposium on High-Temperature Particulate Cleanup for Advanced Coal-Based Power Systems, Proceedings, 20.-23. April 1998, Birmingham, Alabama, USA.*
- [21] DE 197 10 431 C2
- [22] G. Schuch, *Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), (1978).*
- [23] P.J. Hayes, H. Leibold, B. Zimmerlin, R. Schulz, A. Zagorski, P. Hahn, *TRAWMAR Workshop Proceedings, September 1999, San Sebastian, Spanien.*
- [24] B. Zimmerlin, H. Leibold, H. Seifert, *in: A. Dittler et al. (Hrsg.), High Temperature Gas Cleaning II, IMVM, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, (1999).*

Stoffströme und Rückstandsmengen in der Rauchgasreinigung von Abfallverbrennungsanlagen

M. Achternbosch, ITAS; U. Richers, ITC

Einleitung und Problemstellung

In der Bundesrepublik Deutschland wird, unabhängig von der aktuellen Diskussion um die Abfallwirtschaft, von Abfallverbrennungsanlagen ein wesentlicher Beitrag zur Entsorgung von Restmüll geleistet. An 57 Standorten werden Abfallverbrennungsanlagen betrieben, die jährlich ca. 13,5 Mio t Abfall entsorgen können. Darüber hinaus befinden sich mindestens 7 Anlagen in der Planung. [1]

In Zukunft müssen Altanlagen ersetzt und aufgrund aktueller rechtlicher Anforderungen, wie z.B. der „Technische Anleitung Siedlungsabfall“, neue Anlagen errichtet werden. In diesem Zu-

sammenhang stellt sich die Frage, aus welchen Verfahrensstufen die erforderliche Rauchgasreinigung aufgebaut sein soll. Die zum Teil sehr aufwendigen Rauchgasreinigungsanlagen an bestehenden Anlagen sind die Folge der immer weiter herabgesetzten Emissionsgrenzwerte in den letzten 15 Jahren oder ergeben sich aus der Forderung nach einer möglichst weitgehenden Unterschreitung der gesetzlich geforderten Grenzwerte.

Es fehlen Vergleiche, in denen die Verteilung der Schadstoffe in Abhängigkeit vom Aufbau der Rauchgasreinigung unter Berücksichtigung des Hilfschemikalienbedarfs, der erzeugten Rückstände und der Investitionskosten erfasst werden.

Anlagentechnik und Rauchgasreinigung

In der Bundesrepublik Deutschland werden, bis auf wenige Ausnahmen, zur thermischen Abfallbehandlung Rostfeuerungen eingesetzt. Abb. 1 zeigt schematisch den Aufbau einer solchen Anlage.

Der angelieferte Restmüll wird im Bunker (1) zwischengelagert. Mit dem Kran wird die Aufgabevorrichtung für die Zuführung der Abfälle in den Feuerraum (3) beschickt, wo die Abfälle auf dem Rost verbrennen. Die für die Verbrennung erforderliche Luft wird von unten durch Öffnungen im Rost (Primärluft) oder direkt in den Feuerraum (Sekundärluft) eingedüst. Der feste Verbrennungsrückstand, bezeichnet als

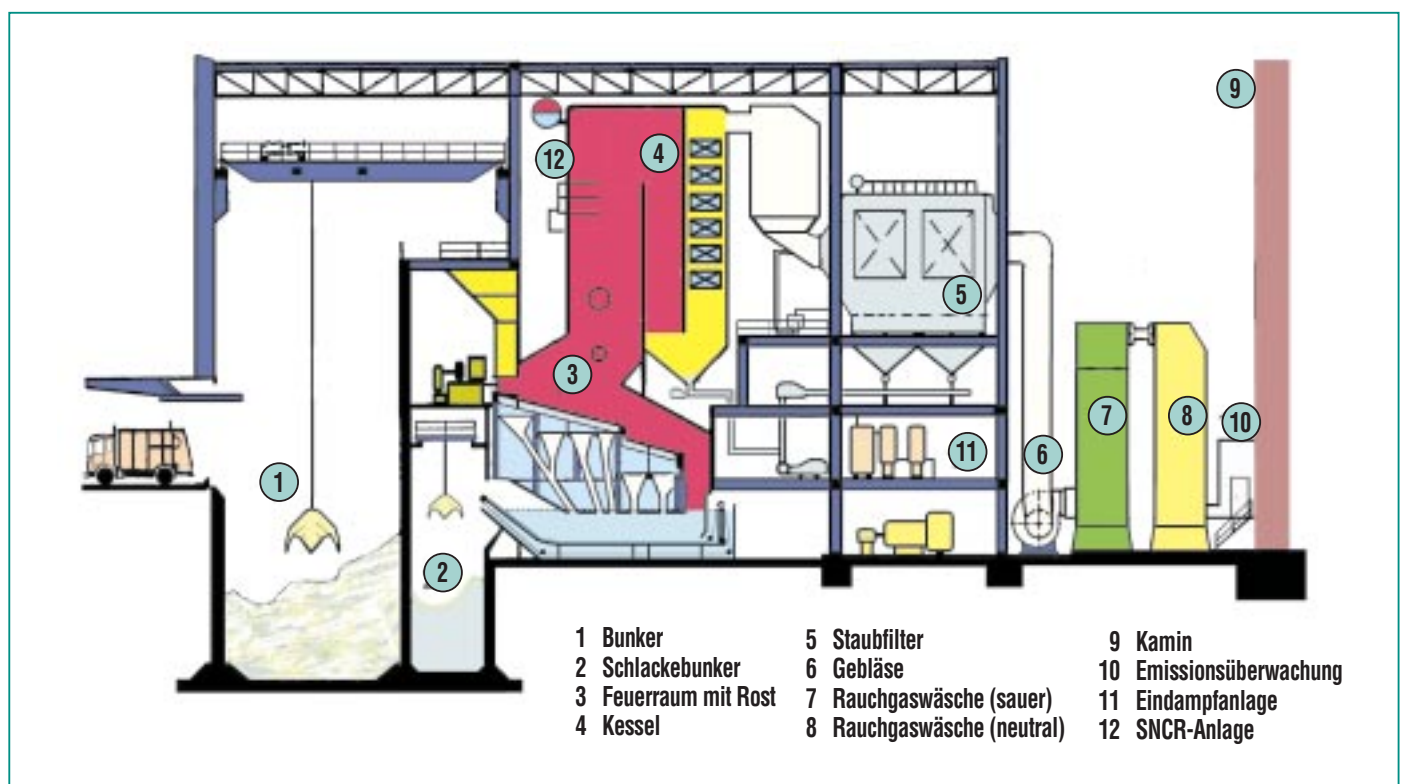


Abb. 1: Schematischer Aufbau einer Abfallverbrennungsanlage mit einfacher nasser Rauchgasreinigung.

Rostasche oder Schlacke, fällt am Rostende in ein Wasserbad und wird dem Schlackebunker (2) zugeführt.

Die heißen Rauchgase, die bei der Verbrennung entstehen, geben ihre Wärmeenergie an den Wasserdampfkreislauf des Kessels (4) ab, der oberhalb des Feuerraums angeordnet ist. Die Temperatur sinkt dabei von ca. 1000 °C auf Werte im Bereich um 200 °C ab. Die im Rauchgas enthaltenen Schadstoffe werden in der nachfolgenden Rauchgasreinigung abgetrennt. Die in Abb. 1 gezeigte Rauchgasreinigung stellt eine relativ einfache Variante von vielen Möglichkeiten dar. Sie ist aus einem Gewebefilter (5) und einem zweistufigen Wäschersystem (7, 8) aufgebaut. Das Gebläse (6) ist zum Ausgleich der Druckverluste erforderlich.

Der im Rauchgas enthaltene Staub wird mit einem Gewebefilter (5) aus dem Rauchgas abgetrennt. Organische Schadstoffe, einschließlich der polychlorierten Dioxine und Furane und Quecksilber, werden ebenfalls im Gewebefilter durch Adsorption an Koks abgetrennt, der vor dem Gewebefilter in den Rauchgaskanal eingeblasen wird. In der ersten Stufe des Wäschersystems wird mit einer sauren Absorptionslösung überwiegend HCl aus dem Rauchgas entfernt. In der zweiten Stufe wird eine neutrale Waschlösung zur Abscheidung von SO₂ verwendet. Zur Reduzierung der Stickoxidemissionen wird das selektive nicht katalytische Reduktionsverfahren (SNCR) eingesetzt (12). Die se-

parate Eindampfung (11) gewährleistet einen abwasserfreien Betrieb der Rauchgasreinigung.

Vorgehensweise und Bilanzraum

Für die Berechnung der Stoffströme wird von einer Modellanlage ausgegangen, denn in früheren Arbeiten wurden für zwei identische aufgebaute großtechnische Rauchgasreinigungsanlagen aufgrund unterschiedlicher Betriebsweisen differierende Stoffströme errechnet [2], [3]. Die erforderlichen Basisdaten wurden bei Betreibern und Herstellern erfragt oder der Literatur entnommen.

Der Bilanzraum umfasst die gesamte Rauchgasreinigungsanlage und berücksichtigt das Rauchgas, die erforderlichen Hilfschemikalien und die Rückstände der einzelnen Verfahrensstufen. Folglich beginnt der Bilanzraum am Kesselende und endet am Kamin. Im Rahmen dieser Arbeit werden Schwefel, Chlor und Cadmium in Form der chemischen Elemente betrachtet. Die Angaben in den dargestellten Sankey-Diagrammen werden auf 1 Tonne Abfall (t_A) bezogen. Nur auf diesem Weg können die unterschiedlichen chemischen Verbindungen, die im verfahrenstechnischen Rauchgasreinigungsprozess entstehen, berücksichtigt werden.

Im Rahmen der Bilanzen wurde für die nassen Rauchgasreinigungssysteme die derzeitige Rechtslage in der Bundesrepublik Deutschland berücksichtigt, die einen abwasserfreien Betrieb fordert. Die Stoffströme in den

Eindampfanlagen werden nicht explizit aufgeführt.

Die Berechnung der Kosten erwies sich aufgrund der vielen Einflussfaktoren als sehr schwierig und beschränkt sich aus diesen Gründen auf die Investitionskosten der einzelnen Anlagenteile ohne Mess- und Regeltechnik und weitere Kosten. Für die Kalkulation wurde von einer Anlage mit einer jährlichen Gesamtkapazität von 200.000 t ausgegangen, die aus zwei identischen Verbrennungslinien mit Rauchgasreinigung aufgebaut ist. Anlagen mit einer deutlich kleineren Gesamtkapazität würden zu hohen Entsorgungskosten verursachen.

Bilanzen für die Rauchgasreinigungsanlagen

Im folgenden werden drei Rauchgasreinigungsanlagen kurz beschrieben und die Stoffbilanzen vorgestellt. Die Modellanlagen A und B setzen zur Rauchgasreinigung Nassverfahren ein, wobei Anlage A einen relativ einfachen Aufbau ohne Feinreinigungsstufe hat und Anlage B dagegen aufwendig mit Berücksichtigung einer Feinreinigung konzipiert ist. Anlage C setzt ein konditioniertes Trockenverfahren mit sehr einfachem Aufbau ein.

Modellanlage A

Die Rauchgasreinigung der Modellanlage A entspricht in ihrem Aufbau der Anlage in Abb. 1. Im Rahmen der Berechnungen wird davon ausgegangen, dass das SNCR-Verfahren keinen Einfluss auf die Stoffströme hat. Für diese

Anlage zeigt Abb. 2 die Chlorbilanz. Die Bilanzierungen gehen einheitlich für alle Modellanlagen von 5890 g/t_A Chlor im staubhaltigen Rohgas aus.

Die in der Flugasche enthaltene Chlorfracht beträgt 720 g/t_A und wird im Gewebefilter abgetrennt. Die Hauptmenge der sich in der Gasphase befindlichen Chlorfracht wird mit 4587 g/t_A im HCl-Wäscher abgeschieden. Im SO₂-Wäscher werden nur 569 g/t_A Chlor aus dem Rauchgas entfernt. Eine Aufarbeitung der Abwässer aus den Wäschern erfolgt extern außerhalb des Bilanzraumes. Am Ende der Rauchgasreinigungsstrecke verlassen mit dem Reingas 14,1 g/t_A Chlor die Anlage.

Wie aus Abb. 3 ersichtlich ist, unterscheidet sich die **Schwefelverteilung** in der Anlage deutlich von der des Chlors.

Die Bilanz beginnt mit einer Schwefelfracht im staubhaltigen Rohgas nach Kessel von 1265 g/t_A Schwefel. Die im Filterstaub enthaltene Schwefelfracht wird auf 560 g/t_A berechnet. Mit 70 g/t_A Schwefel werden im folgenden HCl-Wäscher nur geringe Mengen abgeschieden, wogegen im SO₂-Wäscher 621 g/t_A Schwefel abgetrennt werden. Die Abwässer aus den Wäschern werden in einer externen Anlage aufgearbeitet. Mit dem Reingas gelangen 14,1 g/t_A Schwefel in die Atmosphäre.

Abb. 4 zeigt die Verteilung von Cadmium in der Rauchgasreinigungsanlage der Modellanlage A.

Das im Feinstaub angereicherte Cadmium wird im Gewebefilter

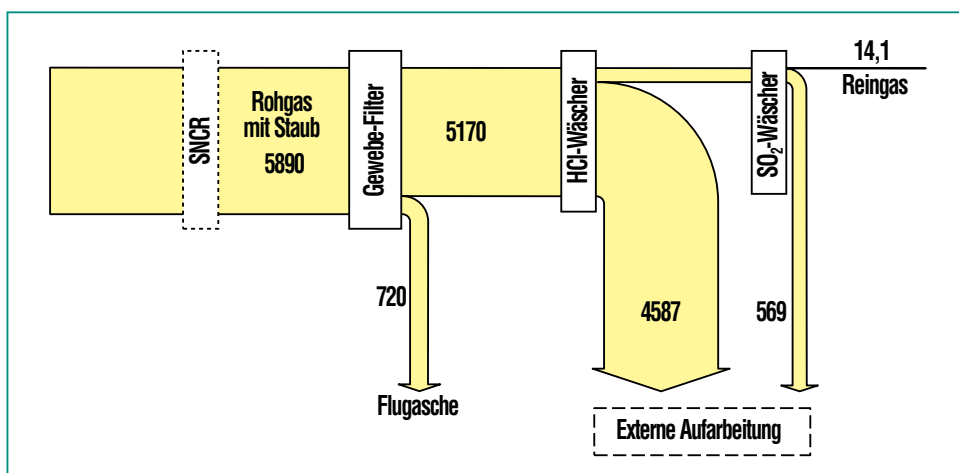


Abb. 2: Chlorbilanz der Modellanlage A; alle Angaben in g/t Abfall.

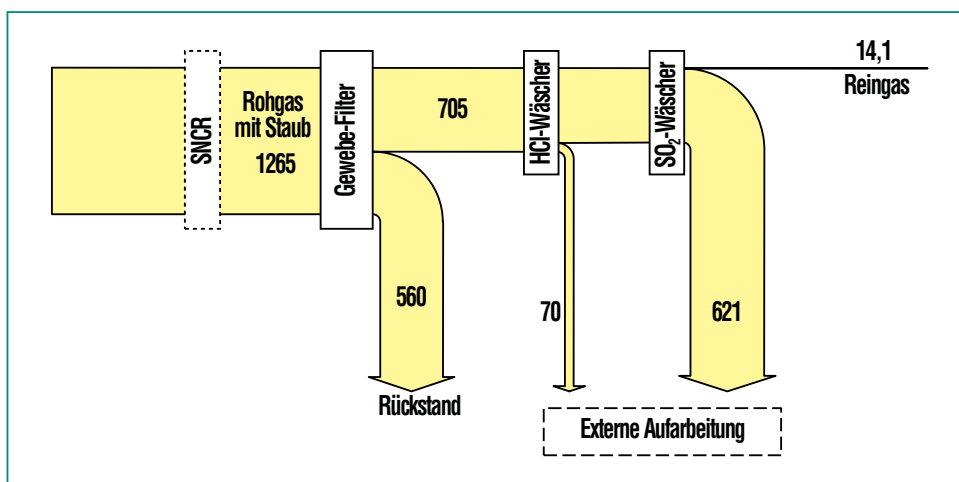


Abb. 3: Schwefelbilanz der Modellanlage A; alle Angaben in g/t Abfall.

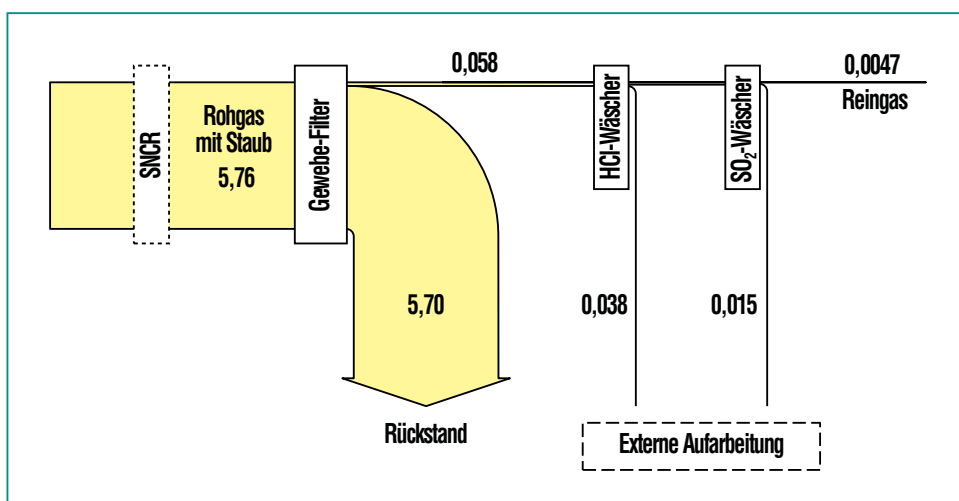


Abb. 4: Cadmiumbilanz der Modellanlage A; alle Angaben in g/t Abfall.

praktisch vollständig aus dem Rohgas entfernt. Es wird hier eine Abscheidung von ca. 99 % zugrunde gelegt, so dass nur noch sehr kleine Mengen von 0,058 g/t_A Cadmium im Rauchgas nach dem Gewebefilter vorhanden sind. Mit 0,038 g/t_A und 0,015 g/t_A an Cadmium werden in den beiden Wäschern nur noch

geringe Mengen abgeschieden. Im Reingase verbleiben 0,0047 g/t_A Cadmium.

Modellanlage B

Die Rauchgasreinigung der Modellanlage B besteht, wie in Abb. 5 gezeigt, aus Elektrofilter, Sprühtrockner, Elektrofilter, HCl-Wä-

scher, SO₂-Wäscher, selektiv katalytischem Reduktionsverfahren (SCR) und Wanderbettadsorber.

Der erste Elektrofilter führt eine Entstaubung des Rohgases durch. Im Sprühtrockner wird die Restwärme der Rauchgase zur Verdampfung der neutralisierten Abwässer aus den Wäschern genutzt. Die dabei fest anfallenden Salzlückstände werden im zweiten Elektrofilter aus dem Rauchgas abgetrennt. Im zweistufigen Wäscher wird das Rauchgas von gasförmigen sauren Schadstoffen befreit, und die entstehenden Absatzungen werden dem Sprühtrockner zugeführt. Nach einer Entstickung mit einem SCR-Verfahren erfolgt eine Feinreinigung der Rauchgase in einem Koks-Wanderbettadsorber.

Für Modellanlage B ist die **Chlorbilanz** in Abb. 6 dargestellt. Ausgehend von 5890 g Chlor pro Tonne Abfall im staubhaltigen Rohgas nach Kessel entfernt der Elektrofilter 720 g/t_A Chlorid, das im Filterstaub gebunden ist.

Für die Abscheidung von Chlor im Elektrofilter wird die gleiche Abscheiderate wie für einen Gewebefilter angenommen, da bei Gewebefiltern der gegenüber Elektrofiltern etwas größere Abscheidegrad sich nicht mengenmäßig in Bezug auf die Fracht auswirkt. Somit entspricht die Abscheidung in der Entstaubungsstufe der in Anlage A.

Beim Durchgang durch den Sprühtrockner verändert sich die Chlorfracht im Rauchgas nicht. Im HCl-Wäscher erfolgt mit 4587 g/t_A Chlor die Hauptab-

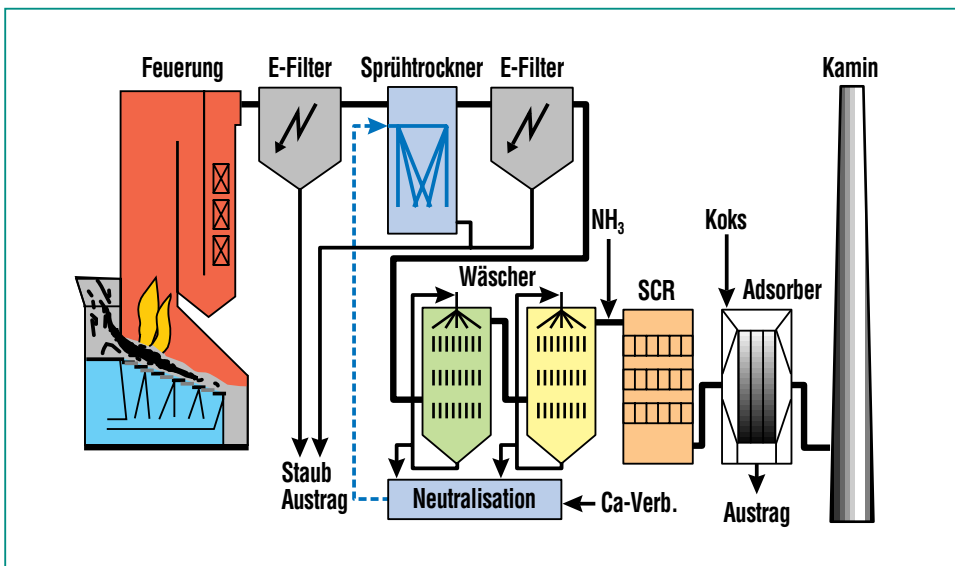


Abb. 5: Schematischer Aufbau der Modellanlage B mit aufwendig aufgebauter nasser Rauchgasreinigung.

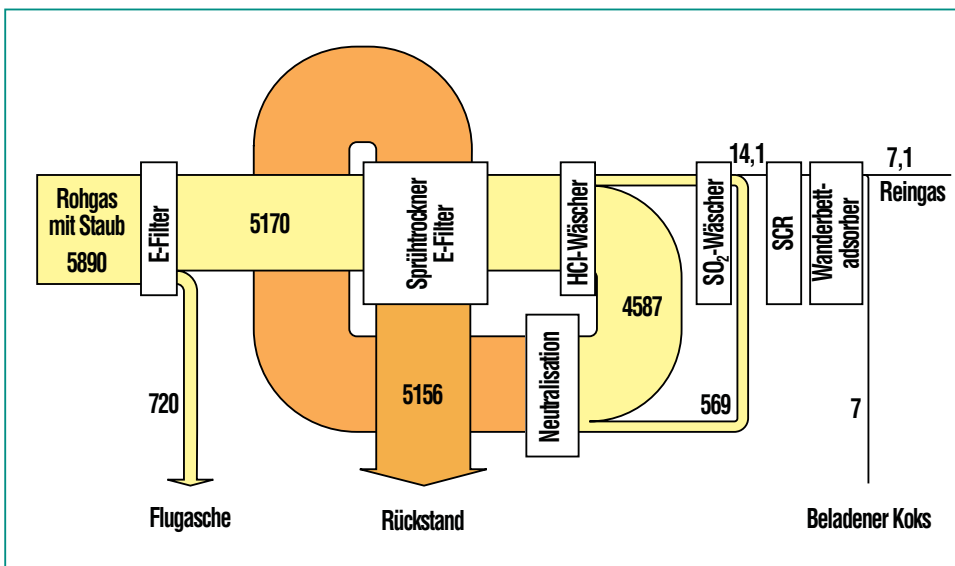


Abb. 6: Chlorbilanz der Modellanlage B; alle Angaben in g/t Abfall.

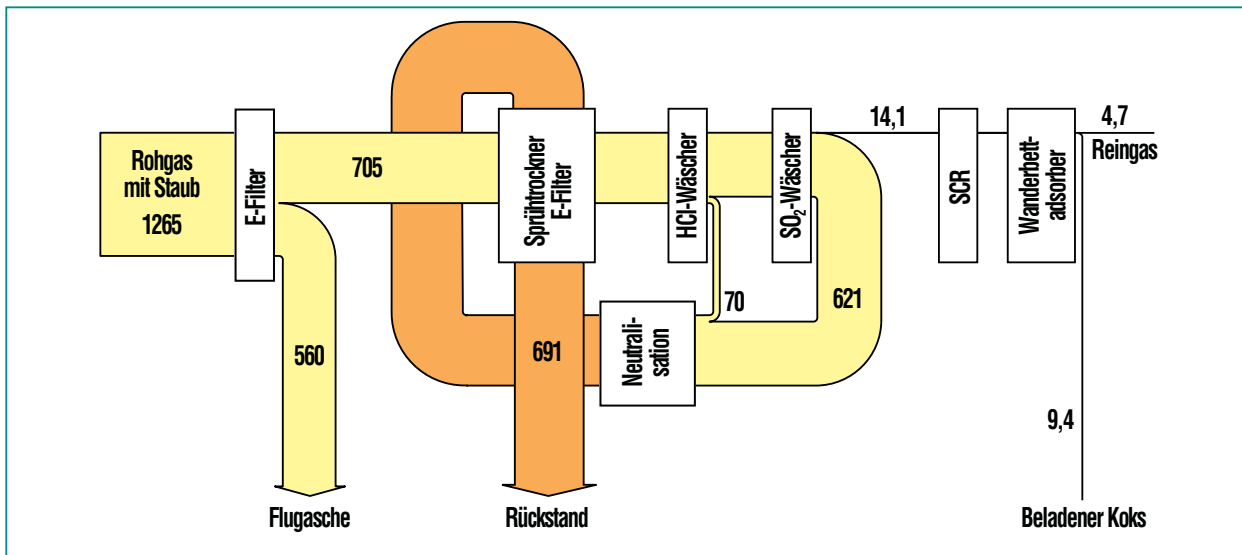


Abb. 7: Schwefelbilanz der Modellanlage B; alle Angaben in g/t Abfall.

scheidung während im SO₂-Wäscher nur 569 g/t_A aus der Gasphase entfernt werden. Die gesamten Abwässer aus den Wäschern und folglich der staubförmige Rauchgasreinigungsrückstand aus dem zweiten Elektrofilter enthalten 5156 g/t_A an Chlorid. Die im Rauchgas verbleibende Chlorfracht durchläuft unverändert den SCR-Katalysator. Der Wanderbettadsorber reduziert die Chlorfracht nochmals um die Hälfte, so dass das Reingas ca. 7 g/t_A Chlor enthält.

Die Verteilung von **Schwefel** in Anlage B ist in Abb. 7 dargestellt.

Von den 1265 g/t_A Schwefel im staubhaltigen Rohgas werden im Elektrofilter 560 g/t_A abgeschieden. Für Schwefel wird entsprechend zu Chlor im Elektrofilter die gleiche Abscheiderate wie für einen Gewebefilter angenommen. Der Sprühtrockner hat auf den Schwefelgehalt im Rauchgas keinen signifikanten Einfluss, und es werden im folgenden HCl-Wä-

scher aus dem staubfreien Rauchgas mit 70 g/t_A nur geringe Mengen an Schwefel abgeschieden. Die Hauptabscheidung erfolgt im SO₂-Wäscher, wo 621 g/t_A Schwefel von der Absorptionslösung aufgenommen werden. Der nachfolgende SCR-Katalysator hat keinen Einfluss

auf die Schwefelfracht. Die abschließende Feinreinigung senkt die Schwefelfracht auf ca. 4,7 g/t_A.

Die **Cadmiumbilanz** in Abb. 8 geht, wie in allen Modellanlagen, von 5,76 g/t_A als Cadmiumfracht im staubhaltigen Rohgas aus.

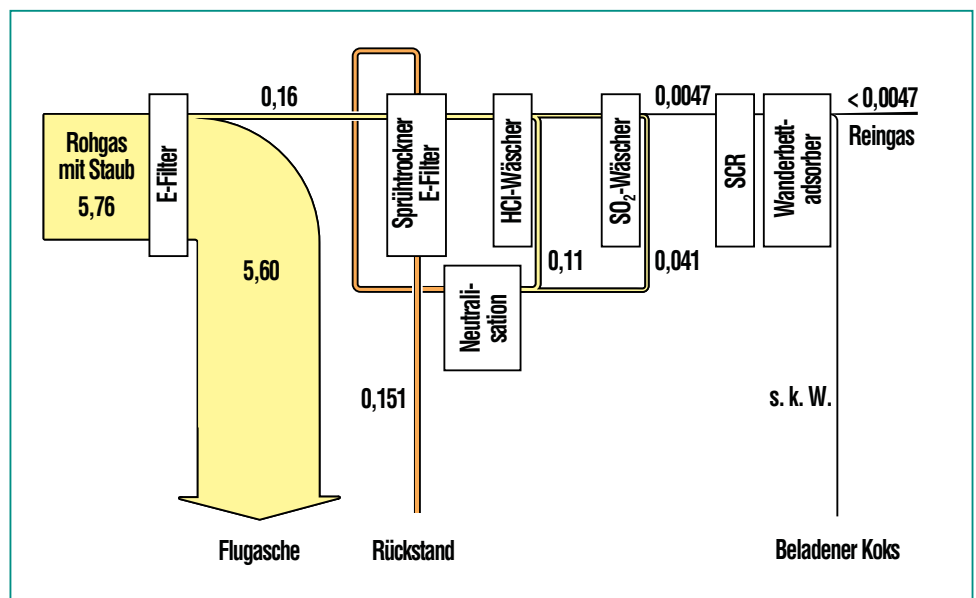


Abb. 8: Cadmiumbilanz der Modellanlage B; alle Angaben in g/t Abfall. (s.k.W.: sehr kleiner Wert).

Im Elektrofilter werden ca. 98% des gesamten Cadmiuminventars abgeschieden, entsprechend 5,6 g/t_A an Cadmium. Nur 0,16 g/t_A an Cadmium gelangen mit dem Rauchgas durch den Sprühtrockner zum HCl-Wäscher, in dem der größte Teil der verbliebenen Fracht abgeschieden wird. Der SO₂-Wäscher nimmt entsprechend den durchgeführten Berechnungen eben-

falls geringe Mengen an Cadmium auf, so dass das Rauchgas nach dem Wäschersystem nur sehr kleine Cadmiummengen (0,0047 g/t_A) enthält. Im abschließenden Wanderbettadsorber findet nochmals eine Abscheidung von Cadmium statt, die aber aufgrund der äußerst niedrigen Konzentrationswerte nicht mehr sinnvoll berechnet werden kann.

Modellanlage C

Das konditionierte Trockenverfahren zur Rauchgasreinigung unterscheidet sich, wie der Abb. 9 zu entnehmen ist, im Aufbau und den verwendeten Hilfschemikalien von den Rauchgasreinigungsanlagen der Anlagen A und B.

In der Rauchgasreinigung der Anlage C werden die Rauchgase nach Austritt aus dem Kessel zunächst durch Eindüsen von Wasser abgekühlt, um optimale Bedingungen für die Abscheidung der Schadstoffe zu erreichen. Zur Abscheidung der Schadstoffe wird dann ein Gemisch aus Calciumhydroxid und Koks staubförmig eingeblasen und im Gewebefilter abgeschieden. Zur Reduzierung der Stickoxide im Rauchgas wird an der Anlage C ein SNCR-Verfahren eingesetzt, das im Kessel installiert ist. In den Sankey-Diagrammen zur Anlage C ist aus Gründen der Vollständigkeit das SNCR-Verfahren eingezeichnet, das aber auf die Stoffströme keinen Einfluss hat.

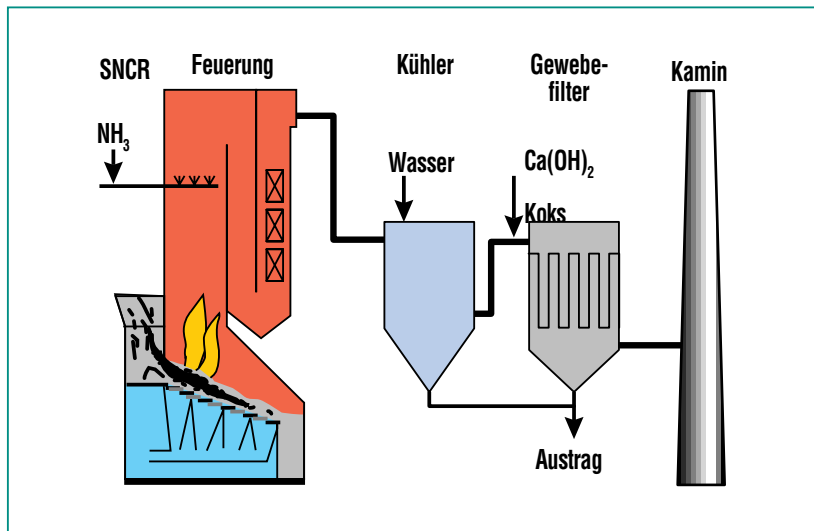


Abb. 9: Schematischer Aufbau der Modellanlage C mit einem konditionierten Trockenverfahren.

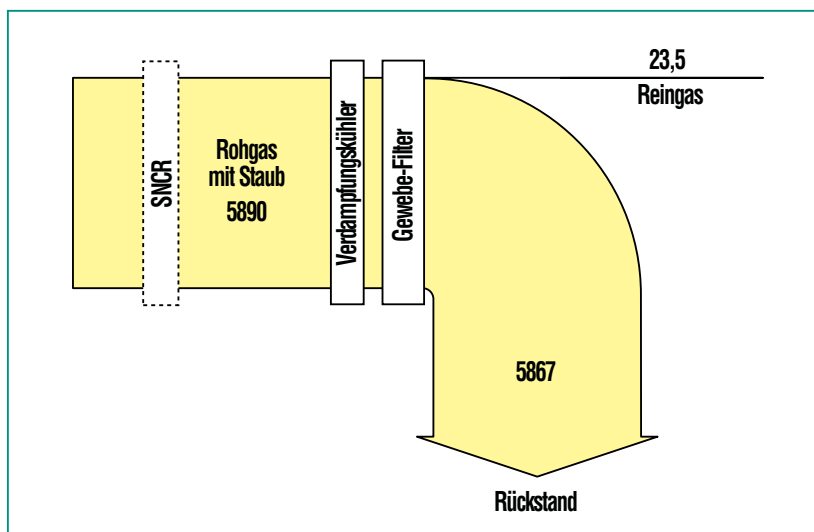


Abb. 10: Chlorbilanz der Modellanlage C; alle Angaben in g/t Abfall.

Wie in Abb. 10 dargestellt, geht auch die **Chlorbilanz** im Falle des konditionierten Trockenverfahrens von 5890 g/t_A an Chlor im staubhaltigen Rohgas nach Kessel aus.

Nach Eindüsung der festen Calciumverbindung wird Chlor überwiegend als Calciumchlorid bzw. als Bestandteil des Flugstaubs im Gewebefilter abgeschieden. Insgesamt sind 5867 g/t_A Chlor im Rückstand enthalten. Im Reingas verbleiben 23,5 g/t_A an Chlor.

Auch beim **Schwefel** ergibt sich, wie in Abb. 11 dargestellt, eine ähnliche Verteilung.

Von den im Rauchgas mit Staub am Kesselaustritt enthaltenen 1265 g/t_A Schwefel werden durch die Zugabe von Calciumhydroxid am nachfolgenden Gewebefilter 1242 g/t_A als Flugstaub bzw. in Form einer Calciumverbindung als Rauchgasreinigungsprodukt abgeschieden. Das Reingas verlässt die Anlage mit einer Schwefelfracht von $23,5 \text{ g/t}_A$.

Cadmium wird entsprechend der Abb. 11, wie im Fall der Anlagen A und B, als Filterstaubbestandteil fast vollständig im Gewebefilter abgetrennt.

Von den $5,76 \text{ g/t}_A$ im staubhaltigen Rohgas nach Kessel sind nach den Berechnungen im Reingas nach dem Gewebefilter mit $0,0047 \text{ g/t}_A$ nur noch sehr geringe Mengen an Cadmium vorhanden.

Vergleich der Rückstandsmengen

Die Rückstandsmengen aus der Rauchgasreinigung werden maßgebend durch die Neutralisation der sauren Schadstoffe HCl und SO_2 sowie durch die Flugstäube bestimmt. Die Berechnungen in dieser Studie gehen von Flugstaubmengen von 16 kg/t_A aus. Von geringerer Bedeutung ist der Einsatz von Koks. Als Neutralisationsmittel werden in dieser Studie für die Nassverfahren NaOH und Ca(OH)_2 und für das Trockenverfahren nur Ca(OH)_2 festgelegt.

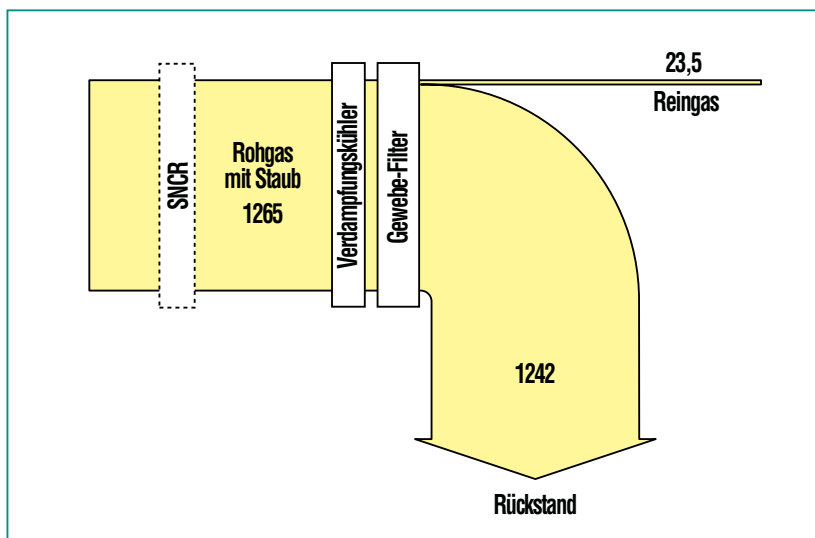


Abb. 11: Schwefelbilanz der Modellanlage C; alle Angaben in g/t Abfall.

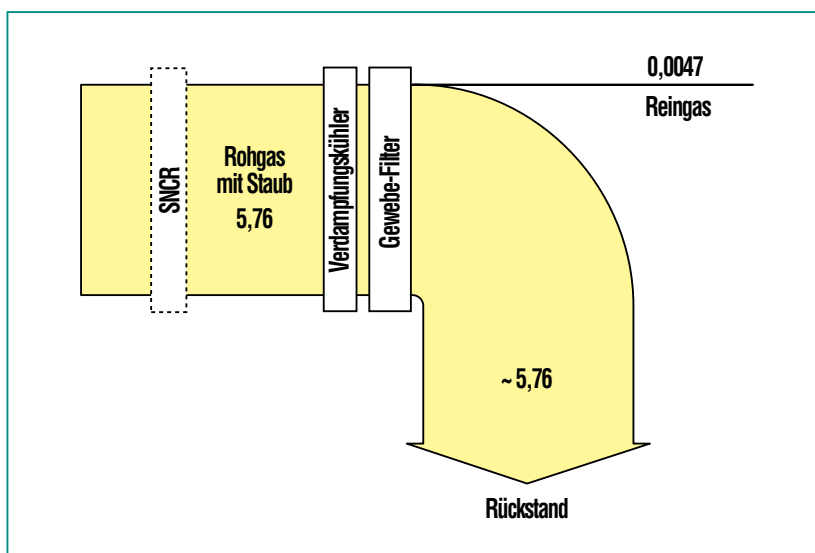


Abb. 12: Cadmiumbilanz der Modellanlage C; alle Angaben in g/t Abfall.

Die eingesetzte Menge an Neutralisationsmitteln ist vom verwendeten Verfahren zur Abscheidung der sauren Schadstoffe abhängig. Nass- und Trockenverfahren benötigen zur Abscheidung der Schadstoffe unterschiedliche stöchiometrische Verhältnisse bei der Zugabe von Neutralisationsmitteln. Das stö-

chiometrische Verhältnis ist definiert als das Verhältnis von Äquivalenten der zugeführten Neutralisationsmittel in die Rauchgasreinigung zu Äquivalenten der sauren Schadstoffe (HCl, HF, SO_2 , etc.) im Rauchgas. Mit dem stöchiometrischen Verhältnis steigen die Rückstandsmengen an. In der folgenden Tabelle 1

Rauchgasreinigung	stöchiom. Faktor zur Berechnung	Schwankungsbereich in der Literatur
nass	1,1	1,1 bis 1,4
quasitrocken	2,5	2,2 bis 3,0
(kond.) trocken	2,8	2,4 bis > 3

Tab. 1: Stöchiometrische Faktoren

sind die in der Literatur erwähnten und im Rahmen der Berechnung verwendeten Werte angegeben.

Durch spezielle Herstellungsverfahren kann die Aktivität der Calciumverbindungen verbessert werden, wodurch der spezifische Verbrauch gesenkt werden kann. Diese hochaktiven Neutralisationsmittel, deren Verwendung relativ hohe Kosten verursacht, werden in dieser Arbeit nicht berücksichtigt.

Die Berechnungen erfassen zusätzlich den Einsatz von Koks im Gewebefilter, und Wanderbettadsorber sowie von Fällungsmitteln zur Abtrennung von Schwermetallen aus den Absatzungen der Wäscher.

Für Anlage B liegt die Verdampfung der aus den Wäschern an-

fallenden Abwässer eigentlich außerhalb der Bilanzgrenzen. Um die gesamten anfallenden Rückstandsmengen der betrachteten Anlagen miteinander vergleichen zu können, werden die bei externer Verdampfung anfallenden Rückstandsmengen in erster Näherung den Rückstandsmengen bei interner Verdampfung im Sprühtrockner gleichgesetzt. Insgesamt fallen in den Modellanlagen die in Tabelle 2 angegebenen Rückstandsmengen an.

Wie der Tabelle 2 entnommen werden kann, sind die gesamten Rückstandsmengen für die beiden Nassverfahren mit ca. 30 kg/t_A gleich. Aufgrund des höheren stöchiometrischen Faktors gegenüber den Nassverfahren ergibt sich beim Trockenverfahren ein mehr als 40 % höherer Reststoffanfall.

Zusammenfassung

Die Bilanzen zeigen bei den Elementen Chlor und Schwefel zwischen den einzelnen Modellanlagen Unterschiede. Die Emissionen dieser Elemente sind im Fall der nassen Rauchgasreinigungsverfahren mit nachgeschalteter Feinreinigungsstufe am niedrigsten. Im Vergleich dazu liegen die Emissionen der konditioniert trockenen Rauchgasreinigungsanlagen auf einem höheren Niveau. Die Einhaltung der gesetzlichen Grenzwerte der 17. BImSchV ist in allen Anlagen sicher möglich.

Die erreichten Emissionswerte werden bei der trockenen Rauchgasreinigung durch Art und Menge des Hilfschemikalieneinsatzes beeinflusst. Dies bedeutet, dass im Fall der konditionierten trockenen Rauchgasreinigung durch eine weitere Anhebung des stöchiometrischen Faktors die Emissionen auf das Niveau von nassen Rauchgasreinigungssystemen abgesenkt werden können.

Eine sichere Differenzierung zwischen den verschiedenen Rauchgasreinigungsanlagen gelingt für die anderen bilanzierten Elemente (Schwermetalle) nicht. Die

Modellanlage	Rückstand aus Neutralisation [kg/t _A]	Flugstaubmenge [kg/t _A]	Kalk/Koks oder Koks [kg/t _A]	TMT-15 [kg/t _A]	Rückstand aus externer Verdampfung [kg/t _A]	Gesamt [kg/t _A]
Anlage A	12,6	16	1	0,019	–	29,7
Anlage B	extern	16	1	–	12,6	29,7
Anlage C	24,5	16	2,2	–	–	42,7

Tab. 2: Gesamte Rückstandsmengen in den Modellanlagen

Anlage	Aufbau der Rauchgasreinigung	[Mio DM/2 Linien]
Anlage A	SNCR / Gewebefilter / Wäschersystem inkl. Verdampfer	19
Anlage B	Elektrofilter / Sprühtrockner / Elektrofilter / Wäschersystem / SCR / Wanderbettadsorber	30
Anlage C	SNCR / Kühler / Gewebefilter	14

Tab. 3: Abgeschätzte Investitionskosten der Modellanlagen ohne Bauleistungen und Mess- und Regeltechnik.

Konzentrationen der betrachteten Metalle sind sehr klein, so dass eine Abhängigkeit von der Rauchgasreinigungsanlage nicht mehr festzustellen ist.

Der Bedarf an Hilfschemikalien und damit die Rückstandsmengen wurden auf der Basis festgelegter stöchiometrischer Faktoren berechnet. Diese Zusammenhänge wurden erstmals fundiert auf einem Weg ermittelt, der einen belastbaren Vergleich verschiedener Rauchgasreinigungsanlagen ermöglicht. Erwartungsgemäß ergaben die Berechnungen eine Abstufung. Die Trockenverfahren haben einen höheren Bedarf an Hilfschemikalien und erzeugen folglich höhere Rückstandsmengen.

Ein Vergleich der Investitionskosten in Tabelle 3 zeigt darüber hinaus, dass die nasse Rauchgasreinigung mit Feinreinigung sich durch hohe Investitionskosten auszeichnet. Für eine konditioniert trocken arbeitende Rauchgasreinigung liegen die Investitionskosten deutlich niedriger.

Den niedrigeren Investitionskosten bei Trockenverfahren stehen allerdings größere Rückstandsmengen gegenüber, deren Entsorgung mit höheren Kosten verbunden ist. Vor diesem Hintergrund erscheint die Modellanlage A mit einer einfachen nassen Rauchgasreinigung als interessante Alternative. Gegenüber konditionierten Trockenverfahren zur Rauchgasreinigung fallen bei

nur wenig höheren Investitionskosten deutlich geringe Rückstandsmengen an.

Literatur

- [1] M. Bart, B. Johnke, W. Butz, *Thermische, mechanisch-biologische Behandlungsanlagen und Deponien für Siedlungsabfälle in der Bundesrepublik Deutschland*, Umweltbundesamt, 2. Auflage (10/1999)
- [2] M. Achternbosch, U. Richers, *Müll und Abfall 30 (1998) S. 246-253*
- [3] M. Achternbosch, U. Richers, *FZKA 5874, Forschungszentrum Karlsruhe (1997)*

Messung und Minderung von Quecksilberemissionen bei der thermischen Abfallbehandlung

H.-R. Paur, H. Büchele, Ch. Schrader, ITC; P. Bolin, Götaverken Miljö AB, Göteborg;
W. Winkler, Seefelder Messtechnik, Seefeld; W. Berkahn, Analysentechnik Salem

Einleitung

Unter den toxischen Schwermetallen ist Quecksilber eines der gefährlichsten Umweltgifte, das ernste Gesundheitsprobleme hervorruft. Der Gebrauch und die Emission von Quecksilber und seiner Verbindungen wird daher durch zahlreiche Gesetze begrenzt. In den letzten Jahren wurde Quecksilber aus vielen Produkten des täglichen Lebens entfernt [1]. Trotz intensiver Bemühungen, das Problemelement Quecksilber im Abfall zu vermeiden oder quecksilberbelastete Produkte getrennt durch Sammlungen zu erfassen, ist die Einhaltung der Grenzwerte für Quecksilber und die Messung von Quecksilber an Abfallverbrennungsanlagen weiterhin ein aktuelles und teilweise schwierig zu lösendes Problem. In zunehmendem Maß werden auch quecksilberhaltige Abfälle (z.B. Klärschlämme) durch sogenannte Mitverbrennung in Kohlekraftwerken entsorgt, deren Abgasreinigung nicht für die Rückhaltung von Quecksilber ausgelegt ist. Ein weiteres Problemfeld ist die Entsorgung quecksilberbelasteter Sonderabfälle (Altlasten, Rückstände), die meist durch untertägige Ablagerung erfolgt. Somit ergeben sich zahlreiche neue Fragestellungen im Bereich der Abgasreinigung und der Emissionsmesstechnik.

Quecksilber wird bei der Verbrennung von Abfällen nahezu vollständig in die Gasphase überführt, da die Quecksilberverbindungen bei den Temperaturen im Feuerraum zerfallen. Die Umsetzung des Elements mit Rauch-

gasinhaltsstoffen wie z.B. Chlorwasserstoff, erfolgt erst bei der Abkühlung des Rauchgases im Kessel und in den Filteranlagen. Bei der Verbrennung von Abfällen werden daher gasförmige Quecksilberverbindungen (z.B. HgCl_2) und elementares Quecksilber (Hg^0) emittiert. Auf Grund der hohen HCl-Konzentration überwiegt im Rauchgas der Hausmüllverbrennung das zweiwertige Quecksilber. Bei der Verbrennung von Klärschlamm fällt dagegen mehr elementares Quecksilber an, da dort die HCl-Konzentration im Rauchgas niedrig ist. Bei der thermischen Behandlung quecksilberkontaminierter Böden entstehen Abgase, die sehr hohe Konzentrationen des Elements aufweisen.

Während das zweiwertige Quecksilber in üblichen Rauchgaswäschern weitgehend ausgewaschen wird, kann das Element wegen seiner schlechten Löslichkeit in wässrigen Lösungen nicht zurückgehalten werden. Ein weiteres Problem stellen die für Quecksilberemissionen typischen Spitzenkonzentrationen dar, die von Rauchgasreinigungssystemen nur unzureichend abgeschieden werden. Höhere Hg^0 -Konzentrationen oder kurzfristige Emissionsspitzen können zur Überschreitung der Emissionsgrenzwerte der 17. BImSchV (Abfallverbrennungsanlagen-Verordnung) führen, die Hg-Emissionen auf einen Halbstundenmittelwert von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ begrenzt. Zusätzliche Minderungsmaßnahmen für Hg^0 werden daher eingesetzt wie z.B. Adsorptionsverfahren auf Aktivkohlebasis. Hierbei entstehen erneut Rückstände, die mit

Quecksilber verunreinigt sind [2]. Diese Rückstände werden meist als Sonderabfall endgelagert. Bei dieser Vorgehensweise bleibt einzuwenden, daß hiermit das Problem verlagert und damit nur teilweise gelöst wird. Eine andere Möglichkeit ist die erneute Verbrennung der kontaminierten Kohle, allerdings entsteht das Problem der Abscheidung des elementaren Quecksilbers erneut. Vorteilhafter wäre es, das Rauchgasreinigungssystem so auszurüsten, daß Quecksilber in rezyklierbarer Form anfällt oder nur eine geringe Abfallmenge einer endlagerfähigen Hg-Verbindung entsteht.

Im folgenden beschreiben wir die Entwicklung und die industrielle Umsetzung unserer Verfahren zur Messung und Abscheidung von Quecksilber bei der thermischen Abfallbehandlung.

Messung der Hg-Konzentration in Rauchgasen

Um die Quecksilberemission vollständig zu erfassen muss sowohl das zweiwertige als auch das elementare Quecksilber bestimmt werden. Da die Konzentrationen meist im ppb-Bereich ($\mu\text{g/m}_N^3$) liegen muß besonders auf die mögliche Verfälschung der Messwerte durch Adsorptionseffekte geachtet werden. Als Materialien empfehlen sich vor allem beheizte Teflonschläuche bzw. Glasrohre. Die Quecksilberchloridkonzentration kann außerdem leicht durch reduzierende Stoffe (z.B. Rauchgaskondensat) verfälscht werden. Auch hier schafft eine konsequente Beheizung der Messleitungen Abhilfe.

Zur Bestimmung der Gesamtkonzentration von Hg in Rauchgasen werden nach der VDI Richtlinie 3868 Waschflaschen mit schwefelsaurer Kaliumpermanganatlösung verwendet [3]. Alternativ ist die trockene Adsorptionsmethode [4] zu empfehlen. Durch Hintereinanderschalten eines HCl-imprägnierten DOWEX-1x8-Iontauschers für HgCl_2 und von jodierter Aktivkohle für Hg^0 kann die Speziation leicht durchgeführt werden (Abb. 1). Nach erfolgter Probenahme werden die Adsorbentien getrennt aufgeschlossen und der Quecksilbergehalt durch Atomabsorptionsspektrometrie (AAS) bestimmt. Mit Hilfe dieser Methode wurden hinter dem Abgasreinigungssystem an der Müllverbrennungsanlage TAMARA und an einer Klärschlammverbrennungsanlage die Quecksilberkonzentrationen bestimmt:

Da bei der Hausmüllverbrennung (Abb. 2 links) vor allem zweiwertiges Quecksilber vorliegt, kann dieses gut im sauren Wäscher der TAMARA-Anlage ausgewa-

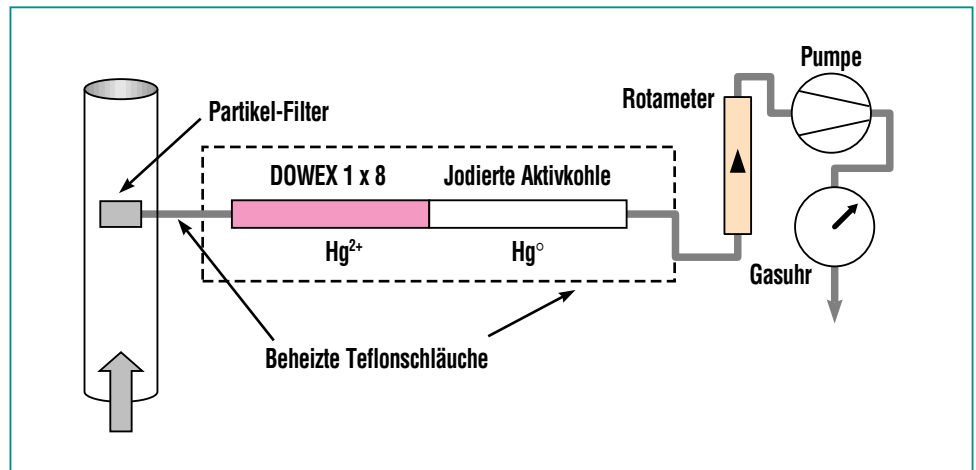


Abb. 1: Adsorptionsmethode zur Speziation von zweiwertigem und elementarem Quecksilber [4].

schen werden. Bei der Klärschlammverbrennung (Abb. 2 rechts) werden deutlich erhöhte Hg^0 -Werte gemessen, da das Element in der Waschstufe der Anlage nicht zurückgehalten wird.

Gemäß der 17. BImSchV müssen Anlagenbetreiber die Einhaltung der Hg-Grenzwerte von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Halbstundenmittelwert) und $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Tagesmittelwert) in regelmäßigen Abständen nach-

weisen. Die kürzlich erfolgte Änderung der 17. BImSchV [5] fordert die Installation kontinuierlicher Hg-Messeinrichtungen bereits bei Überschreitung von 20% eines Grenzwertes. Zur Messung der Quecksilberemissionen von Verbrennungsanlagen stehen am Markt mehrere kontinuierliche Messgeräte zur Verfügung, unter anderem das früher im Forschungszentrum entwickelte Hg-Mat-2-System [6],[7]. Im Rahmen der gesetzlichen und wirtschaftli-

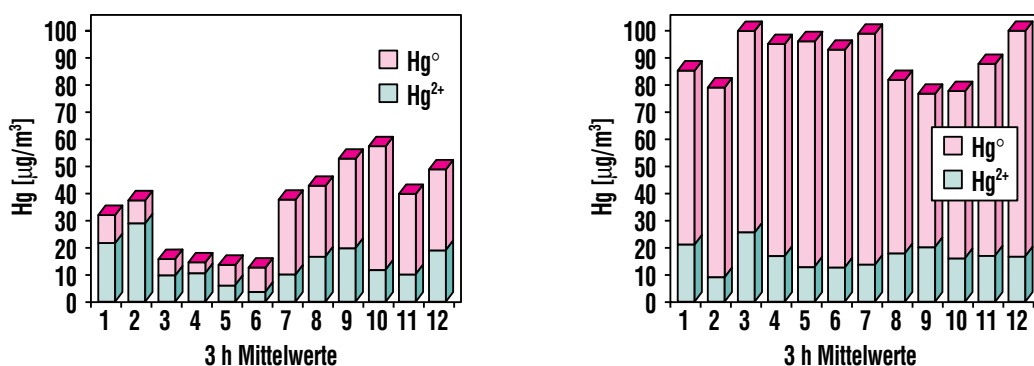


Abb. 2: Quecksilberemission einer Hausmüllverbrennungsanlage (links) und einer Klärschlammverbrennungsanlage (rechts). Es wurden jeweils 3-h-Proben hinter den zweistufigen Rauchgaswaschanlagen genommen und analysiert.

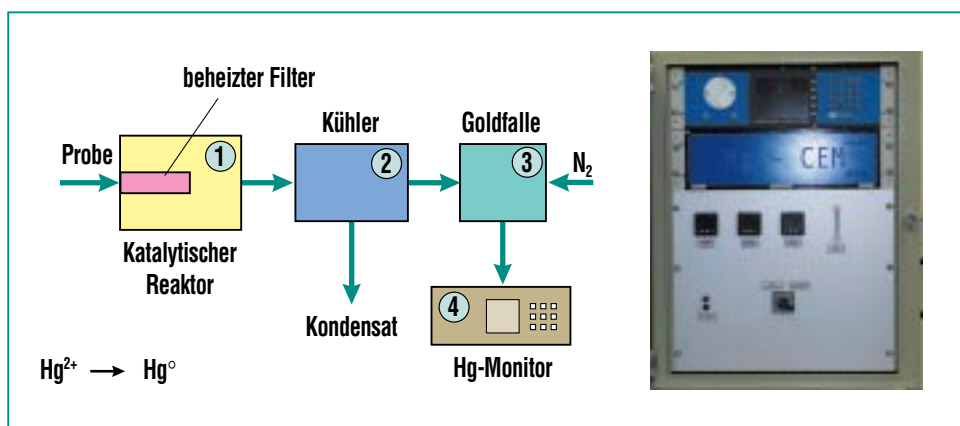


Abb. 3: Hg-CEM Messgerät zur kontinuierlichen Bestimmung der Hg-Konzentration in Rauchgasen.

chen Anforderungen dürfte in den nächsten Jahren die Mitverbrennung quecksilberhaltiger Abfälle wie z.B. Klärschlämme in Kohlekraftwerken und anderen Hochtemperatur-Prozessen (Stahlwerk, Zementindustrie) an Bedeutung gewinnen. Daher ist ein gesteigerter Bedarf für die Überwachung der Hg-Emission aus Abfallverbrennungsanlagen sowie aus Kohlekraftwerken und der Zementindustrie erkennbar.

Zur Überwachung dieser Anlagen werden Messgeräte mit deutlich höherer Empfindlichkeit als der des Hg-Mat-2 benötigt. Außerdem sollen bei der Anwendung in SO₂-haltigen Gasen Querempfindlichkeiten vermieden werden. Schließlich wird ein weitgehend wartungsfreier Betrieb angestrebt, der auf die Nutzung der früher verwendeten Reduktionschemikalien verzichtet.

Diese Forderungen werden von dem gemeinsam mit einem Industriepartner neuentwickelten Hg-CEM erfüllt, dessen Schaltskizze in Abb. 3 gezeigt ist. Hier wird das Rauchgas zunächst über einen Katalysator (1) geleitet, der das zweiwertige Quecksilber in Hg⁰ umwandelt. Dann wird das Rauchgas schockartig abgekühlt (2), um die Neubildung von zweiwertigem Quecksilber zu vermeiden und um Wasserdampf und saure Bestandteile zu kondensieren. Das so gereinigte Gas durchströmt eine Goldfalle (3), in der das elementare Hg durch Amalgambildung gebunden wird. In etwa zweiminütigen Abständen wird die Falle elektrisch aufgeheizt und das Hg in einen Stickstoffstrom desorbiert. Die Hg-Konzentration im Stickstoff wird mittels Atomabsorption bei 254 nm gemessen (4) und bei bekanntem Durchsatz auf die Rauchgaskonzentration umgerechnet.

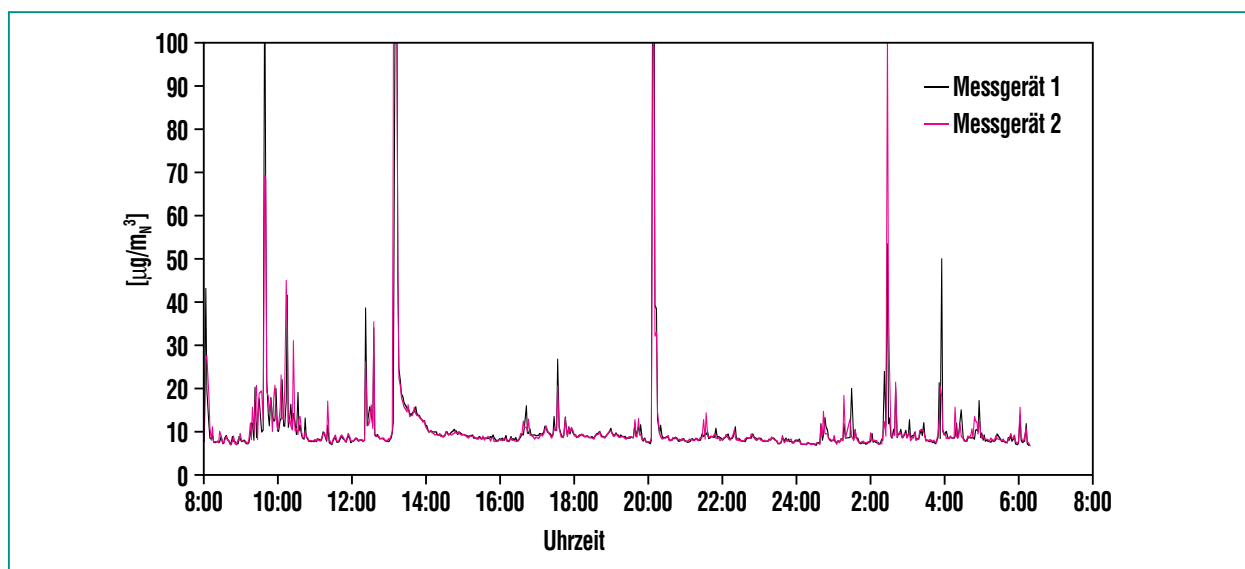


Abb. 4: Kontinuierliche Messung der Emissionskonzentration (in µg/m³) von Quecksilber mit dem Hg-CEM an einer Hausmüllverbrennungsanlage (2 parallel laufende Messgeräte).

Das Gerät wurde an einer Hausmüllverbrennungsanlage im Dauerbetrieb getestet und optimiert. Die Abb. 4 zeigt eine typische Messkurve über 24 Stunden, die am Abgas hinter dem Rauchgasreinigungssystem mit zwei unabhängig von einander arbeitenden Geräten erhalten wurde. Hierbei fällt auf, dass kontinuierlich eine untere Hg-Konzentration emittiert wird, die offenbar nicht unterschritten wird. Zusätzlich zeigen die Emissionsspitzen, dass bei der Verbrennung Hg-haltiger Abfälle kurzzeitig Hg-Emissionen auftreten, die vom Rauchgasreinigungssystem nicht zurückgehalten werden. Da die Emissionsspitzen nur von kurzer Dauer sind, werden die Tagesmittelwerte nicht überschritten. In nächster Zeit soll das Messgerät auch für die Hg-Messung im Rauchgas von Zementwerken und von Großkraftwerken erprobt werden.

Abscheidung von Quecksilber durch das MercOx-Verfahren

Um die Emission von elementarem Quecksilber und die Entstehung Hg-verunreinigter Abfälle zu verringern, wurde der MercOx-

Prozess entwickelt (Abb. 5a). Beim MercOx-Prozess wird Wasserstoffperoxid verwendet, um elementares Quecksilber im Rauchgas zu oxidieren. Das oxidierte Quecksilber kann ebenso wie das schon im Rauchgas vorhandene zweiwertige Quecksilber leicht in der nachfolgenden salzsauerem Rauchgaswaschstufe gelöst werden. Hierdurch fällt das Quecksilber im Abwasser in konzentrierter Form an und kann durch übliche Fällungsverfahren leicht in endlagerfähiger Form gewonnen werden.

Das Verfahren wurde zunächst in einem Pilotversuch an der Klärschlammverbrennungsanlage in Neureut bei Karlsruhe getestet (Abb. 5b). Hierbei wurde eine Pilotanlage für einen Volumenstrom von $350 \text{ m}_N^3 \text{ h}^{-1}$ hinter dem Elektrofilter installiert. Nach der Optimierung wurde das Verfahren schließlich im Dauerbetrieb über 120 h gefahren (Abb. 6). Es konnte gezeigt werden, daß die gesetzlichen Grenzwerte für Quecksilber gut eingehalten wurden und eine deutliche Kostenersparnis gegenüber den konventionellen Verfahrenskombinationen erzielt wird [8].

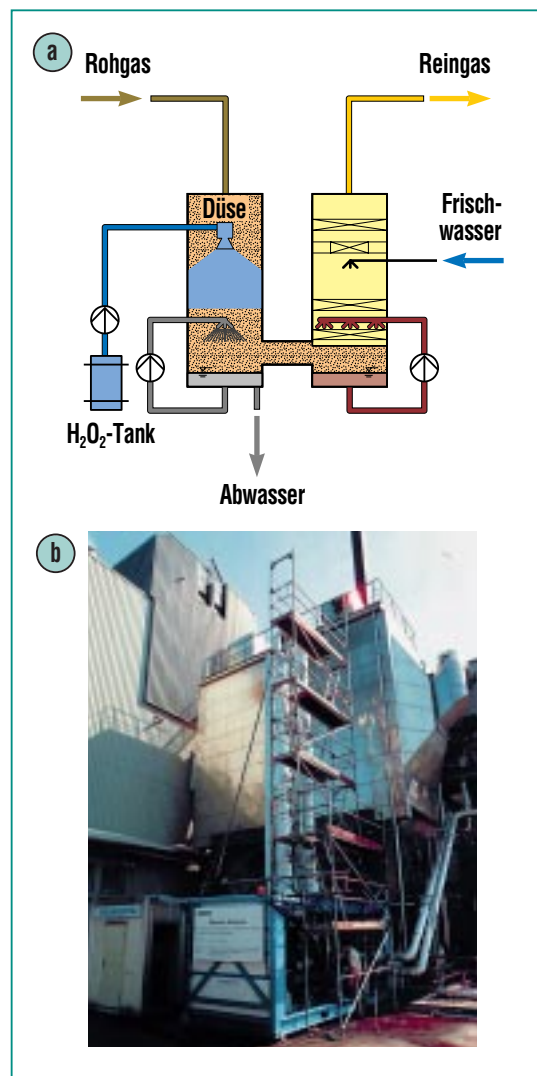
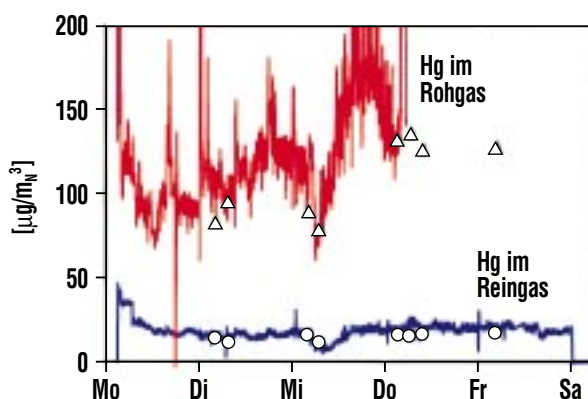


Abb. 5: (a) Vereinfachtes Schema des MercOx-Verfahrens zur Abscheidung von elementarem Hg aus Rauchgasen. (b) Versuchsanlage zum MercOx-Verfahren an der Klärschlammverbrennung in Neureut bei Karlsruhe.

Abb. 6: Dauerbetrieb des MercOx-Verfahrens an einer Klärschlammverbrennung (Durchsatz $350 \text{ m}_N^3/\text{h}$; durchgezogene Linien: automatische Messung der Quecksilberemission auf der Rohgasseite (rote Linie) und auf der Reingasseite (blaue Linie); \triangle, \circ manuelle Probenahme über je 3 Stunden, zur Kontrolle der automatischen Messgeräte).

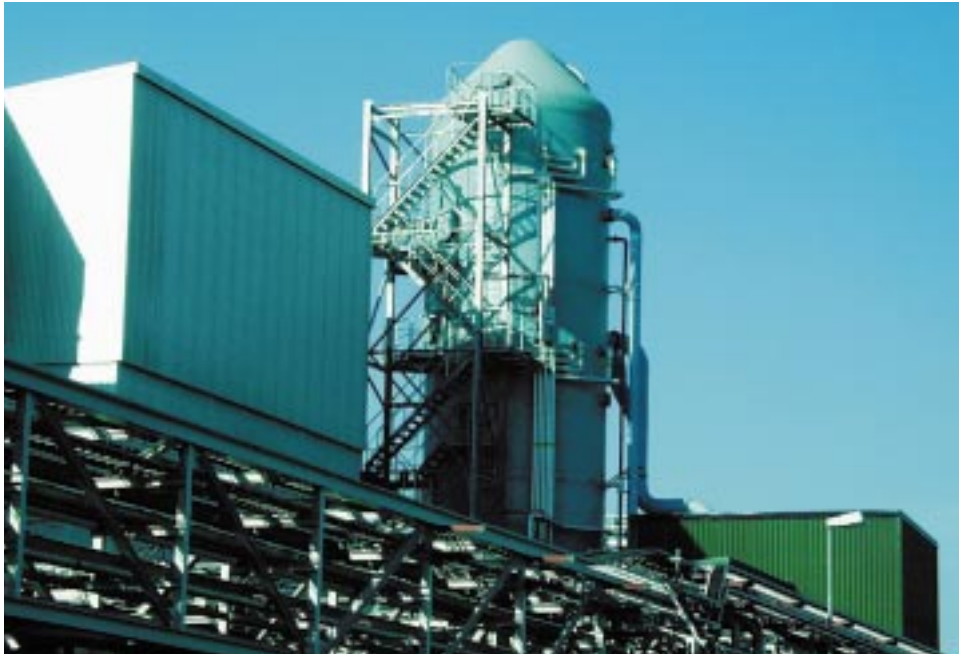


Abb. 7: MercOx-Verfahren als Endstufe der Rauchgasreinigung einer Sonderabfallverbrennungsanlage.

Industrielle MercOx-Anlagen

Wie oben bereits erwähnt besteht ein Problem der Quecksilberemission in der kurzzeitigen Überschreitung der gesetzlichen Grenzwerte, falls die vorhandene Rauchgasreinigungsanlage Spitzenbelastungen nicht abpuffert. Hier kann das MercOx-Verfahren vorteilhaft als zusätzliche Reinigungsstufe eingesetzt werden.

Die Abb. 7 zeigt die Installation einer MercOx-Anlage an einer Sonderabfallverbrennungsanlage. Durch Installation einer MercOx-Anlage werden vor allem Emissionsspitzen bei der Verbrennung von Hg-haltigen Sonderabfällen abgefangen. Die Anlage hat einen Volumenstrom von 100.000 m³/h und ist im Jahr 2000 in Betrieb gegangen.

Eine weitere industrielle Anwendung des MercOx-Verfahren ist die thermische Behandlung quecksilberbelasteter Böden. Derartige Sanierungsfälle sind vor allem in der chemischen Industrie (Chloralkalielektrolyse) anzutreffen. Bei der Verbrennung des Erdreichs im Drehrohrföfen

entstehen Rauchgase, deren Quecksilberkonzentration im Bereich von 100.000 µg/m³ liegt.

Die Abb. 8 zeigt das Verfahren, mit dem hohe Konzentrationen von Quecksilber aus dem Rauchgas entfernt werden sollen. Das Rauchgas wird in einer Quenche auf 210 °C abgekühlt und mittels Schlauchfilter entstaubt. In einem Kühler wird das Rauchgas sodann auf 25 °C abgekühlt. Hierbei kondensiert elementares Quecksilber, das der Wiederverwertung zugeführt wird. Das kalte Rauchgas, das noch 20.000 µg/m³ Quecksilber enthält, wird in einer MercOx-Stufe auf geringe Restkonzentrationen von Quecksilber und Schwefeldioxid gereinigt. Bei dem Verfahren wird elementares und zweiwertiges Quecksilber in einer Stufe ausgewaschen. Aus der Lösung kann Quecksilber wiedergewonnen werden oder als stabiler Niederschlag der Endlagerung zugeführt werden. Diese Anlage wird derzeit im Rahmen eines EU-Projektes bei einer schwedischen Chemiefirma errichtet. Das anschließende Ent-

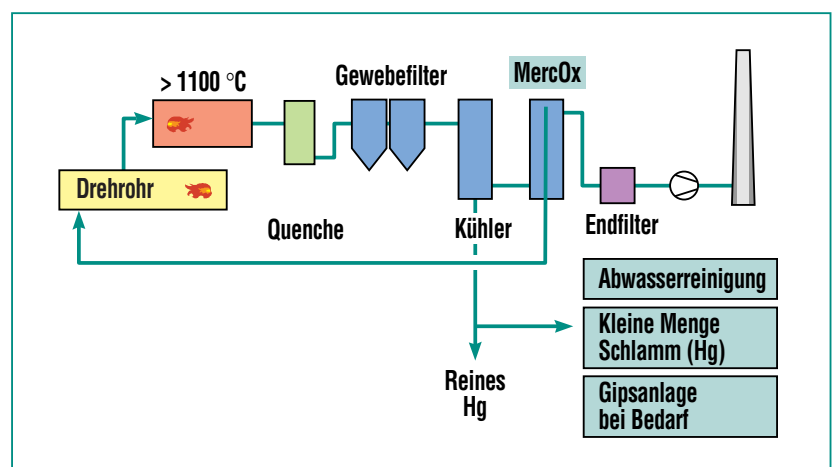


Abb. 8: Verfahrensschema für die thermische Behandlung quecksilberbelasteter Böden.

wicklungsvorhaben konzentriert sich auf die Prozessoptimierung, die Wiedergewinnung des Quecksilbers und die Abscheidung weiterer Schadstoffe.

Zusammenfassung

Bei der Verbrennung quecksilberhaltiger Abfälle werden elementares und zweiwertiges Quecksilber mit den Rauchgasen emittiert. Ein neuartiger Quecksilbermonitor wurde entwickelt, der bei kommunalen Müllverbrennungsanlagen wie auch bei Industrieanlagen, die Abfälle als Sekundärbrennstoff nutzen, eingesetzt wird. Das MercOx-Verfahren zur Abscheidung von Quecksilber wurde für die Anwendung bei der Klärschlammverbrennung, der Sonderabfallverbrennung und der thermischen Bodensanierung

untersucht und für die industrielle Anwendung optimiert. Durch das MercOx-Verfahren können elementares und zweiwertiges Quecksilber sowie saure Schadgase gleichzeitig abgeschieden werden. Somit ergeben sich deutliche Kostenvorteile gegenüber der bisher üblichen mehrstufigen Rauchgasreinigung.

Danksagung

Die Autoren danken Herrn Rieber, Herrn Woletz und Herrn Kuck für ihre engagierte technische Mitarbeit sowie den Herrn Andersson und Andreason (GMAB) für ihre aktive Projektarbeit im Rahmen des SAKAB-Vorhabens. Wir bedanken uns bei Herrn Pepper (Klärwerk Karlsruhe) und bei Dr. Druckenbrodt (GML Abfallwirtschaft mbH) für die Unterstüt-

zung unserer Feldmessungen an der Klärschlammverbrennungsanlage in Neureut sowie an der Müllverbrennungsanlage in Ludwigshafen. Wir bedanken uns bei der Stabsabteilung Technologietransfer und Marketing für die Förderung der Projekte und für die Unterstützung bei der Vermarktung des Hg-CEM und des MercOx-Verfahrens. Die Entwicklung des MercOx-Verfahrens wird im Rahmen des EU-Projektes No. LIFE 99ENV/S/000626 gefördert.

Literatur

- [1] A. Rauhut, *Metall*, 51. Jahrgang, Nr. 7-8/97, 377 – 382 (1997).
- [2] J. Furrer, S. Kreis, J. Stöhr, H. Hunsinger, „Verfahren zur Restreinigung von Abgasen“ in: „Symposium 25 Jahre LIT, 5 Jahre TAMARA, Forschung und Entwicklung im Kernforschungszentrum Karlsruhe zur Hausmüllverbrennung“ 7./8. April 1992, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 5000 (März 1992).
- [3] VDI 3868, Blatt 2 (1995) : „Bestimmung der Gesamtemission von Metallen, Halbmetallen und ihren Verbindungen; Messen von Quecksilber; Atomabsorptionsspektrometrie mit Kaltdampftechnik“; VDI/DIN-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4; Verein Deutscher Ingenieure, Düsseldorf.
- [4] M. Metzger, H. Braun, *Chemosphere* 16, S. 821 – 32 (1987).
- [5] Verordnung zur Änderung der Siebzehnten, der Neunten und der Vierten Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes vom 23. Februar 1999 (Bundesgesetzblatt I S. 186)
- [6] H. Braun, A. Gerig, *Abfallwirtschaftsjournal* 2 S. 819 – 826 (1990).
- [7] Firmenschrift der Fa. Seefelder Messtechnik: „Hg-Mat 2 – Messsystem zur kontinuierlichen Überwachung von Quecksilber – Emission Measuring System for Mercury Monitoring“
- [8] H.-R. Paur, H. Büchele, S. Andreason, R. Wilms, *Chem. Eng. Technol.* 21, P. 161 – 164 (1998).

Verbrennung von heizwertarmen Feststoffen mit Sauerstoff

E. Henrich, ITC

Einleitung

Über 80% der weltweit verbrauchten Energie wird durch Verbrennung erzeugt. In technischen Verbrennungsprozessen setzt der Mensch die größten Stoffmengen überhaupt um, vor allem die begrenzten Erdöl-, Erdgas- und Kohlevorräte. Pro Jahr werden über 100 Milliarden Tonnen Verbrennungsluft verbraucht; die Emission der entsprechenden Rauchgasmengen ist Hauptursache der anthropogenen Luftverschmutzung. Die derzeit praktizierte Reinigung von Rauchgasen und Brennstoffen reicht wahrscheinlich nicht aus, um die Umweltverträglichkeit der Verbrennung auch langfristig zu garantieren. Kohlendioxid ist nicht nur das Hauptverbrennungsprodukt, sondern gilt auch als Hauptverursacher der befürchteten globalen Erwärmung. Seine Rückhaltung und Entsorgung wäre technisch noch weitaus aufwendiger.

Die Energiegewinnung spielt eine Schlüsselrolle für unseren Lebensstandard und die Umweltqualität. Nur mit einer ausreichenden Menge umweltverträglich erzeugter Energie lassen sich auch die stofflichen Umweltprobleme beherrschen. Die Weltbevölkerung und der Energieverbrauch pro Kopf wird vorerst noch zunehmen, vor allem in den wenig entwickelten Ländern. Daher erwartet man, dass sich im Verlauf der nächsten 50 Jahre der Weltenergieverbrauch etwa verdoppeln wird und erst danach etwa konstant bleibt. Aus technischen und politischen Gründen stehen neue, nachhaltige und umweltverträgliche Energiequellen nicht rechtzei-

tig und im erforderlichen Umfang zur Verfügung. Der rasche Anstieg des globalen Energieverbrauchs wird sich daher vorerst vor allem auf einen unerwünschten Mehrverbrauch an fossilen Brennstoffen einstellen müssen.

Die Kosten für die hochwertigen fossilen Brennstoffe werden aber schon lange vor ihrer Erschöpfung allmählich ansteigen, so dass auch weniger wertvolle Brennstoffe und Abfälle bei der Energiegewinnung eine zunehmende Rolle spielen werden. In dieser Situation ist die Weiterentwicklung von Verbrennungsprozessen bezüglich Effizienz und Umweltverträglichkeit für die verschiedensten Brennstoffe eine wichtige Vorsorgemaßnahme.

Durch Verbrennen mit Sauerstoff anstelle von Luft könnte man das Rauchgasvolumen drastisch reduzieren und heizwertarme und verschmutzte Brennstoffe wie beispielsweise brennbare Abfälle, Ölschiefer oder Teersande etc. energetisch effizienter und umweltverträglicher nutzen. Beim Verbrennen heizwertarmer Abfälle lassen sich die zusätzlichen O₂-Kosten auch wirtschaftlich rechtfertigen, weil Entsorgungsaspekte wichtiger sind als die Energiegewinnung. Solange hochwertige fossile Brennstoffe noch preisgünstig und in ausreichender Menge verfügbar sind, ist die Verbrennung minderwertiger Festbrennstoffe mit Sauerstoff nur im Rahmen der thermischen Abfallbehandlung von Interesse [1]. Wenn aber riesige Mengen von CO₂ z. B. zur Ausbeutesteigerung bei der Tertiärförderung von Erdöl gebraucht werden oder aus Klimaschutzgründen abgetrennt

und endgelagert werden sollen, kann der O₂-Einsatz die anschließende CO₂-Abtrennung aus dem Rauchgas erheblich erleichtern oder sogar unnötig machen.

Technische Anwendungen der Verbrennung mit Sauerstoff

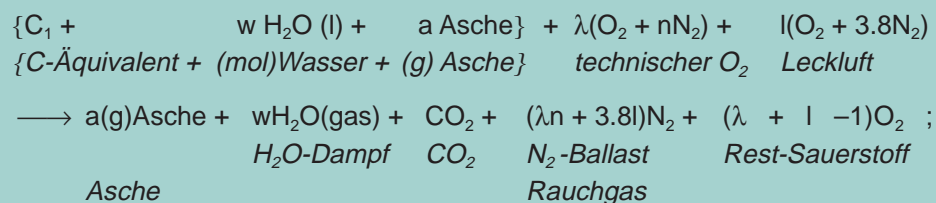
Der Einsatz von teurem Sauerstoff anstelle der kostenlosen Luft wird meist durch Brennstoffeinsparung oder verfahrenstechnische Vorteile gerechtfertigt. Ersteres gilt für die Erzeugung von Hochtemperatur-Prozesswärme, weil mit Luft der prozentuale Wärmeverlust mit dem heißen Rauchgas zu groß wird. Beispiele sind Schweißbrenner oder O₂/Gas-Brenner für Glasschmelzen oder für Metall- und Erzschnmelzen in der NE-Metallurgie. Die Stahlindustrie benutzt Sauerstoff wegen der Verfahrensvorteile beim Frischen des Roheisens; sie wird als Großverbraucher mit O₂-Pipelines versorgt.

Beispiele für O₂-Anwendungen in der Abfallwirtschaft sind: (1) die geregelte O₂-Anreicherung der Verbrennungsluft bis 35 Vol% bei der Müllverbrennung auf Rückschubrosten der Firma Martin [4] zur Verbesserung von Regelung, Feuerlage und Ascheausbrand; (2) O₂-Einspeisung während einer Sonderabfall-Fassaufgabe in Verbrennungsdrehrohre zur Vermeidung von CO-Emissionsspitzen und eines schlechten Rauchgasausbrandes [5]; (3) Industrielle Verbrennung von halogenierten Abfall-Kohlenwasserstoffen mit technischem Sauerstoff unter Druck; dabei wird HCl zurückge-

wonnen und Dampf erzeugt [6]. Häufig wird auch bei der biologischen Reinigung von Industrieabwässern die „kalte Abfallverbrennung“ durch Verwendung von Sauerstoff an Stelle von Luft beschleunigt. Beim „Thermoselect-Verfahren“ [2] und beim „Konversionsverfahren“ der Firma Noell [3] werden autotherme Vergaser zur Abfallbehandlung eingesetzt. Zuerst wird der Abfall pyrolysiert und dann das Pyrolysegas und der Pyrolysekoks durch Teilverbrennung mit einer unterstöchiometrischen O₂-Menge zu Synthesegas (CO plus H₂) umgesetzt. In der Energiewirtschaft spielt die autotherme Vergasung von heizwertreichen Brennstoffen mit O₂/Wasserdampf-Gemischen zur Erzeugung von Brenngas, Reduktionsgas, Synthesegas oder Wasserstoff eine wichtige Rolle.

Grundlagen

Stöchiometrische Reaktionsgleichungen liefern die Stoff- und Energiebilanzen zur quantitativen Beurteilung der unterschiedlichen Verbrennungsprozesse. Die Brennstoffformel ergibt sich aus einer Elementar- und Kurzanalyse. Sie enthält die Anteile an brennbaren organischen Stoffen C₁H_xO_y(N_zS_uCl_v), freiem Wasser und inerter Asche, üblicherweise bezogen auf C₁. Hauptprodukte der Verbrennung sind CO₂ und H₂O; freies Wasser wird verdampft, Asche bleibt unverändert zurück. Aus den Heteroatomen N, S, Cl bilden sich flüchtige Nebenprodukte N₂ (NO, N₂O), SO₂ (SO₃, COS), HCl (RCl). Sie erfordern meist nur geringe Nachkorrekturen an der Hauptbilanz.



Die Reaktionsenthalpie beträgt $\Delta H = -394$ kJ bei Bezug auf C₁ ;
Die formale Molmasse des Brennstoffs beträgt $\{12 + 18w + a\}$;
 λ ist die Stöchiometriezahl bezüglich O₂ ;
 n ist die O₂-Reinheit als N₂/O₂-Verhältnis ; für Luft ist $n \approx 3.8$;
 l ist die Leckluft in Stöchiometrieeinheiten ;

Tab. 1: Die stöchiometrische Verbrennungsgleichung ist die Basis für die Erstellung von Stoff- und Energiebilanzen.

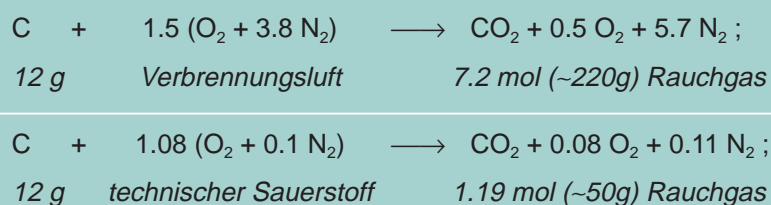
Für grundlegende Betrachtungen kann man den Brennstoff als Gemisch aus Kohlenstoff, Wasser und Asche auffassen. Der äquivalente C-Anteil liefert die Verbrennungswärme. Das aus organischem H gebildete Verbrennungswasser wird von vornherein im Wassergehalt berücksichtigt (siehe Tab. 1).

Volumen und Zusammensetzung des Rauchgases bei einer überstöchiometrischen Verbrennung ($\lambda > 1$) ergeben sich aus der Reaktionsgleichung. Schlechter Ausbrand oder geringe Heteroatom-Anteile bewirken daran nur kleine Korrekturen. Verbrennt man beispielsweise wasser- und aschefreien Kohlenstoff in techni-

ischem Sauerstoff (91%) anstatt in Luft, so dass für einen guten CO-Ausbrand im Rauchgas noch 7 Vol% Restsauerstoff übrig bleiben, wird das spezifische Rauchgasvolumen etwa sechsmal kleiner (siehe Tab. 2).

Durch Leckluft, Brennstoffstickstoff, vor allem aber durch einen hohen Wassergehalt im Brennstoff, wird das Rauchgasvolumen häufig nur um einen Faktor 3 vermindert.

Die adiabatische Verbrennungstemperatur ergibt sich beim Aufheizen aller Verbrennungsprodukte (Rauchgas plus Asche) mit der Verbrennungswärme (Brennwert H_o), wobei die Verdamp-



Tab. 2: Das Beispiel der Kohlenstoffverbrennung mit Luft oder Sauerstoff zeigt die drastische Reduktion des Rauchgasvolumens bei fehlendem Stickstoffballast (7 Vol.% Rest-O₂).

fungswärme des Wassers (44 kJ/mol) subtrahiert werden muss (Heizwert H_u). Praktische Verbrennungstemperaturen liegen wegen der unvermeidbaren Isolations- und Strahlungsverluste des Feuerraums etwas darunter. Für eine extrem grob vereinfachte Abschätzung kann man annehmen, dass die spezifischen Wärmen pro kg für alle Produkte etwa gleich sind und temperaturunabhängig im Mittel etwa 1 kJ / (kg · K) betragen. Bei einer Wärmefreisetzung von mehr als 1 MJ pro kg Reaktionsmasse wird dann ein Temperaturanstieg um > 1000 K und daher eine selbstgängige Verbrennung erreicht.

Die Verbrennungstemperatur ist ein grobes Maß für die Verbrennungsgeschwindigkeit. Unter etwa 600°C wird eine Feststoffverbrennung in Luft zu langsam. Extrem hohe Temperaturen können – je nach Ofentyp – die Werkstoffe zerstören. Dazwischen liegt der technisch nutzbare Bereich. Die höchste Verbrennungstemperatur ergibt sich mit der stöchiometrischen Menge Luft bzw. Sauerstoff. Für einen guten Ausbrand ist aber eine geringe Überstöchiometrie, mit einem Restsauerstoffgehalt von etwa 3 bis 10 Volumenprozent im Rauchgas erforderlich. Beim Verbrennen klassischer Brennstoffe mit Luft macht der N_2 -Ballast etwa 70+ Massen% des Reaktionsgemischs aus. Beim Verbrennen mit Sauerstoff wird der N_2 -Ballast um rund eine Größenordnung reduziert, so dass die Verbrennungstemperatur deutlich ansteigt. Bei sehr aschereichen, nassen und daher heizwertarmen Brennstoffen, liefert der N_2 -Ballast immer noch

grob die Hälfte der Reaktionsmasse. Dadurch wird die Verbrennungstemperatur erniedrigt und reicht für eine selbstgängige Verbrennung mit Luft nicht mehr aus. Eine selbstgängige Abfallverbrennung in einer Rost- oder Drehrohrfeuerung wird daher bei Heizwertäquivalenten unter 15 bis 20 Gew.% Kohlenstoff schwierig; durch starke Heizwertschwankungen und eine hohe Müllfeuchte wird das noch verstärkt.

Eine energetische Nutzung der Verbrennungswärme erfolgt fast ausschließlich über die fühlbare Wärme der heißen Rauchgase. Bei Brennstoffen wie Holz und Kohle ist der Energieanteil in der fühlbaren Wärme der kleinen Aschemenge vernachlässigbar, weil sie meist weniger als 1% der gesamten Produktmasse ausmacht. Eine Müllasche macht aber bis zu 5% der gesamten Produktmasse und etwa der Gesamtenergie aus. Werden sehr aschereiche und darum heizwertarme Brennstoffe mit Sauerstoff verbrannt, kann die Asche unter Umständen bis über die Hälfte der Gesamtmasse ausmachen. Daher müssen noch Verfahren und Apparate zur besseren Nutzung des großen Energieanteils in der heißen Asche entwickelt werden.

Sauerstoff statt Verbrennungsluft

Spezielle heizwertarme Feststoffabfälle mit C-Äquivalenten unter etwa 15 Gew.% verbrennen mit Luft nicht mehr selbstgängig. Wenn man aus Siedlungsabfall mit typischen Heizwertäquivalenten von 25 bis 30% Kohlenstoff ei-

ne heizwertreiche und schadstoffarme Fraktion für eine effizientere Energiegewinnung abtrennt, bleibt ein heizwertarmer Restmüll übrig. Weitere Beispiele für heizwertarme Abfälle sind Altdeponien oder kontaminierte Böden. In Deutschland dürfen ab 2005 Abfälle mit mehr als 5% organischem Kohlenstoff nicht mehr deponiert werden; eine unüberwachte Deponierung ist erst unter 1% Kohlenstoff zulässig. So niedrige Werte können nur durch Verbrennung oder Vergasung erreicht werden. Darüber hinaus gibt es riesige Vorräte an minderwertigen fossilen Brennstoffen wie Ölschiefer, Ölsande etc. und in ausgebeuteten Erdöl- oder Kohlelagerstätten findet man oft noch erhebliche Mengen Restbrennstoff.

Für heizwertarme Abfälle ist zur Schadstoffzerstörung sowieso eine thermische Behandlung erforderlich. Gewöhnlich werden sie mit zusätzlichem Stützbrennstoff durch die üblichen Verbrennungsanlagen durchgesetzt. Stützbrennstoff reduziert den Anlagendurchsatz und vergrößert das Rauchgasvolumen und den Reinigungsaufwand. Hilfreich ist ein Vorheizen der Verbrennungsluft im Gegenstrom zum heißen Rauchgas und eventuell auch des Brennstoffs mit der heißen Asche. Die zum Vorheizen abgezweigte Wärme steht aber für die Energiegewinnung nicht mehr zur Verfügung; die großen Wärmetauscher verteuern und komplizieren die Anlage. Beide Maßnahmen werden häufig kombiniert.

Der Einsatz von technischem Sauerstoff hat – von den Kosten abgesehen – im Vergleich zu

Stützbrennstoff oder Eduktvorheizung eine Reihe von Vorteilen:

- Das Rauchgasvolumen wird drastisch reduziert. Die Rauchgasreinigung kann in der Konzeption vereinfacht werden und mit kleineren Apparaten erfolgen. Daraus resultiert das größte Einsparpotential. Nach einer Abfallverbrennung mit Luft macht die Rauchgasreinigung wegen der strengen Emissionsbeschränkungen der 17. BImSchV grob die Hälfte des Behandlungsaufwandes aus.
- Ein Verbrennungs-ofen für O₂-Betrieb wird kleiner und billiger.
- Bessere energetische Nutzung des Brennstoffs. Die zusätzliche Nutzung der Aschewärme kann von besonderer Bedeutung werden.
- Eine ausreichend hohe Verbrennungstemperatur bewirkt: schnelle Verbrennung, gutes Zündverhalten, effiziente Schadstoffzerstörung, guter Ausbrand von Rauchgas und Asche, Einsparen von Stützbrennstoff.
- Die Abtrennung des CO₂ vor einer technischen Nutzung oder Entsorgung lässt sich einsparen oder vereinfachen, weil nach einer O₂-Verbrennung die CO₂-Gehalte im trockenen Rauchgas sehr hoch sind.
- Zum Verbrennen heizwertarmer Abfälle – unter etwa 15 Gew.% C oder Hu < 5 MJ/kg – wird pro Tonne nur wenig O₂ benötigt – etwa das 4-fache Gewicht des C-Äquivalents.

Beim Verbrennen heizwertreicher Stoffe mit Sauerstoff muss man gekühltes Rauchgas in den

Ofen zurückführen, damit er nicht durch Überhitzung zerstört wird. Ofen und Abhitzekessel bleiben daher ähnlich groß wie beim Luftbetrieb (siehe Abb. 1) [13, 14]. Heizwertreiche Brennstoffe kann man aber mit Wasserdampf und einer unterstöchiometrischen O₂-Menge ohne Reaktorüberhitzung autotherm vergasen.

Vergleichende Kostenabschätzung

O₂-Produktionskosten: Verbrennungsluft ist kostenlos verfügbar. Sauerstoff wird daraus meist durch Tieftemperaturrektifikation gewonnen, evtl. auch durch Druckwechseladsorption, durch chemische oder durch Membranverfahren. Technischer Sauerstoff mit > 90% Reinheit kostet bei 1 bar Lieferdruck frei Anlage etwa 0.1 Euro pro Norm-m³;

das sind ca. 70 Euro pro Tonne. Der Energieverbrauch bei der O₂-Gewinnung liegt um 0.4 kWh(el.) pro Norm-m³ Sauerstoff, das entspricht etwa der 10-fachen theoretischen Trennarbeit. Daraus resultiert ein erhebliches Potential für Verbesserungen bei künftigen Entwicklungen. Im Hinblick auf Leckluft und den unvermeidbaren Brennstoffstickstoff ist eine hohe O₂-Reinheit unnötig. Die Verbrennungswärmen üblicher Festbrennstoffe liegen im Bereich um 5 kWh(th.) pro Norm-m³ Sauerstoff. Allein für den O₂-Einsatz zahlt man also ca. 0.02 Euro pro kWh(th.), etwa zwei Drittel soviel wie Mitte 2000 für den veredelten Brennstoff Heizöl EL.

Anlagen- und Betriebskosten: Eine konventionelle Rostfeuerung für Siedlungsabfall lässt eine O₂-Anreicherung der Verbrennungsluft bis auf etwa 35 Vol% zu

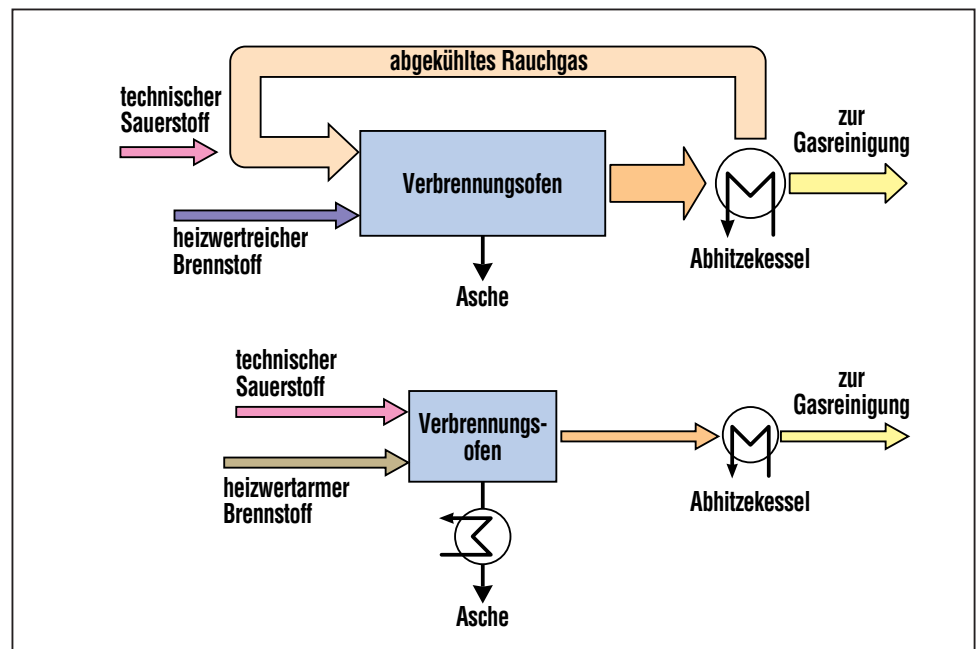


Abb. 1: Verbrennung mit Sauerstoff: für heizwertarmen Brennstoff ohne Rauchgasrückführung; für heizwertreichen Brennstoff mit Rauchgasrückführung.

[4]. Dadurch wird das spezifische Rauchgasvolumen auf etwa die Hälfte reduziert. Die potenziellen Vorteile des O₂-Einsatzes können im vollen Umfang aber nur in neuen und speziell für diese Prozessführung ausgelegten Anlagen genutzt werden; darüber hinaus auch nur mit heizwertarmen Brennstoffen, die nicht mehr mit Luft, sondern nur noch mit Sauerstoff selbstgänglich verbrennen. Dazu gibt es wenig Erfahrungen. Verfahrenstechnische Einsparmöglichkeiten werden hier am Beispiel eines heizwertarmen feuchten Abfalls mit 10% C-Äquivalent, 30% Wasser und 60% Asche abgeschätzt (Tab. 3).

Mit technischem Sauerstoff läuft hier die Verbrennung selbsterhaltend. Mit Verbrennungsluft wird erst nach Zugabe von Stützbrennstoff bis auf etwa 15 Gew.% C-Äquivalent eine Heizdichte über 1 MJ/kg Gesamtreaktionsmasse und damit eine ausreichend hohe

Temperatur für eine selbstgängige Verbrennung erreicht. Das Rauchgasvolumen wird dadurch rund viermal größer als mit Sauerstoff. Bei gleicher Verfahrenskonzeption und damit gleicher Gasverweilzeit in Rauchgasreinigung, Abhitze-kessel und Feuerraum vergrößert sich auch das Apparatvolumen und der Volumendurchsatz entsprechend. Der Kostendegressions-exponent für Maßstabsänderungen in solchen Anlagen liegt im Bereich um 0.7. Grob vereinfacht werden damit die Kosten in der kleineren O₂-Anlage auf 4^{0.7}/4 d.h. rund 2/3 der Anlage mit Verbrennungsluft geschätzt. Weitere Einsparungen durch denkbare konzeptionelle Vorteile sind dabei noch nicht berücksichtigt, beispielsweise höhere Stromgut-schriften durch eine effizientere Stromerzeugung, Erzeugung einer besser verwertbaren, auslaug-resistenten Schmelzschlacke oder konzeptionelle Vereinfachungen

der Rauchgasreinigung, evtl. bis hin zum Wegfall der Rauchgas-entstickung, die rund 10% der thermischen Behandlungskosten ausmacht.

Man nimmt hier wie abgeschätzt für die Behandlung heizwertarmer Spezialabfälle an, dass lediglich etwa 1/3 der gängigen thermischen Behandlungskosten durch den O₂-Einsatz gespart werden. Mit diesem Drittel müssen nach der voranstehenden Reaktionsgleichung 0.33 t Sauerstoff pro Tonne Abfall für rund 24 Euro finanziert werden. Übersteigen die thermischen Behandlungskosten das Dreifache dieses Betrages, also rund 70 Euro pro Tonne Abfall, wird der O₂-Einsatz günstiger als Verbrennungsluft. Bei geringeren Abfallheizwerten wird die Situation noch vorteilhafter, weil man mit Stützbrennstoff immer bis auf etwa 15% C-Äquivalent aufstocken muss.

Verbrennung mit Sauerstoff:			1.9 MJ/kg Reaktionsmasse
$\{C + 2 H_2O (l) + 72g \text{ Asche} \} + 1.23 (O_2 + 0.1 N_2) \longrightarrow 72g \text{ Asche} + 2 H_2O (g) + CO_2 + 0.23 O_2 + 0.12 N_2 ;$			
<i>heizwertarmer Abfall</i>	<i>technischer Sauerstoff</i>		<i>Rauchgasvolumen: 3.35 mol pro C₁ mit 7 Vol% Sauerstoff</i>
Verbrennung mit Luft und Stützbrennstoff:			1.06 MJ/kg Reaktionsmasse
$\{C + 2 H_2O (l) + 72g \text{ Asche} \} + 0.5 \{C\} + 2.5 (O_2 + 3.8 N_2) \longrightarrow 72g \text{ Asche} + 2 H_2O (g) + 1.5 CO_2 + O_2 + 9.5 N_2 ;$			
<i>heizwertarmer Abfall</i>	<i>Stütz- brennstoff</i>	<i>Verbrennungs- luft</i>	<i>Rauchgasvolumen: 14 mol pro C₁ mit 7 Vol% Sauerstoff</i>
Verbrennung mit Luft ohne Stützbrennstoff:			0.86 MJ/kg Reaktionsmasse
$\{C + 2 H_2O (l) + 72g \text{ Asche} \} + 1.7 (O_2 + 3.8 N_2) \longrightarrow 72g \text{ Asche} + 2 H_2O (g) + CO_2 + 0.7 O_2 + 6.46 N_2 ;$			
<i>heizwertarmer Abfall</i>	<i>Verbrennungs- luft</i>		<i>Rauchgasvolumen: 10.16 mol pro C₁ mit 7 Vol% Sauerstoff</i>

Tab. 3: Verbrennungsgleichungen für einen heizwertarmen Abfall der mit kalter Luft nicht mehr selbstgänglich verbrennt. Eine selbstgängige Verbrennung mit ausreichend hohen Verbrennungstemperaturen wird durch Sauerstoffeinsatz oder mit Luft nach Zugabe von Stützbrennstoff erreicht.

Chemische und Verfahrenstechnische Aspekte

Im Labor wurden grundlegende Stoff- und Reaktionsdaten zum O_2 -Betrieb gemessen [7,8] und in einer kleinen, modular aufgebauten Drehrohranlage wurde eine Reihe von mehr praktischen Aspekten untersucht [9,10]. Die Abb. 2 und 3 zeigen ein Übersichtsfoto und ein vereinfachtes Fließbild der Anlage GUSTAV (für Grundlegende Untersuchungen zur Stofflichen und Thermischen Abfall-Verwertung).

Verbrennungskinetik: Eine möglichst hohe Ofentemperatur unter Ausnutzung des Wärmetransports durch Strahlung ist ein entscheidender Faktor für einen schnellen Brennstoffumsatz. In einer üblichen Rost- oder Drehrohrfeuerung sind die Aufheizung des stückigen Brennstoffs auf Pyrolysetemperatur und die anschließende heterogene Verbrennung der porösen Pyrolysekoks die langsamsten Vorgänge, welche die Brennstoffverweilzeit bestimmen. Die homogene Schwelgasverbrennung in der Gasphase über dem Brenngut erfolgt schnell und lässt sich auch relativ zuverlässig modellieren [16]. Der O_2 -Betrieb ohne N_2 -Ballast ändert daran nichts Grundlegendes.

An verschiedenen Pyrolysekoks wurde mit Hilfe einer Thermowaage und eines Rohrreaktors untersucht, wie die langsame und geschwindigkeitsbestimmende Koksverbrennung von der O_2 -Konzentration abhängt [9,11]. Abb. 4 zeigt einen Messdatensatz von Verbrennungsraten für Müllkoks aus der Müllpyrolyse-

anlage Burgau. Die Koksverbrennungsrate wächst im chemischen Regime bei relativ niedriger Temperatur etwa mit der Wurzel aus der Sauerstoffkonzentration (Ordnung 0.5). Durch Extrapolation der heterogenen Reaktionsmodelle auf höhere Temperaturen in die Regimes der Poren- und Grenzschichtdiffusion folgt dann, dass die O_2 -Reaktionsordnung von ursprünglich 0.5 über 0.75 bis auf 1 anwächst. Weil die O_2 -Konzentration im Rauchgas am Ofenausstritt und in der Nachbrennkammer bei Luft- oder O_2 -Betrieb etwa gleich bleibt, und bei höherer O_2 -Konzentration im vorderen Ofenteil die O_2 -Reaktionsordnung zwischen 0.5 und 1 liegt, darf man mit Sauerstoff im Vergleich zu Luft nur moderate Ausbrandverbesserungen erwarten. Die entscheidende Rolle dafür spielt die Verbrennungstemperatur, nicht der Sauerstoffgehalt.



Abb. 2: Übersichtsfoto der kleinen Drehrohranlage (GUSTAV).

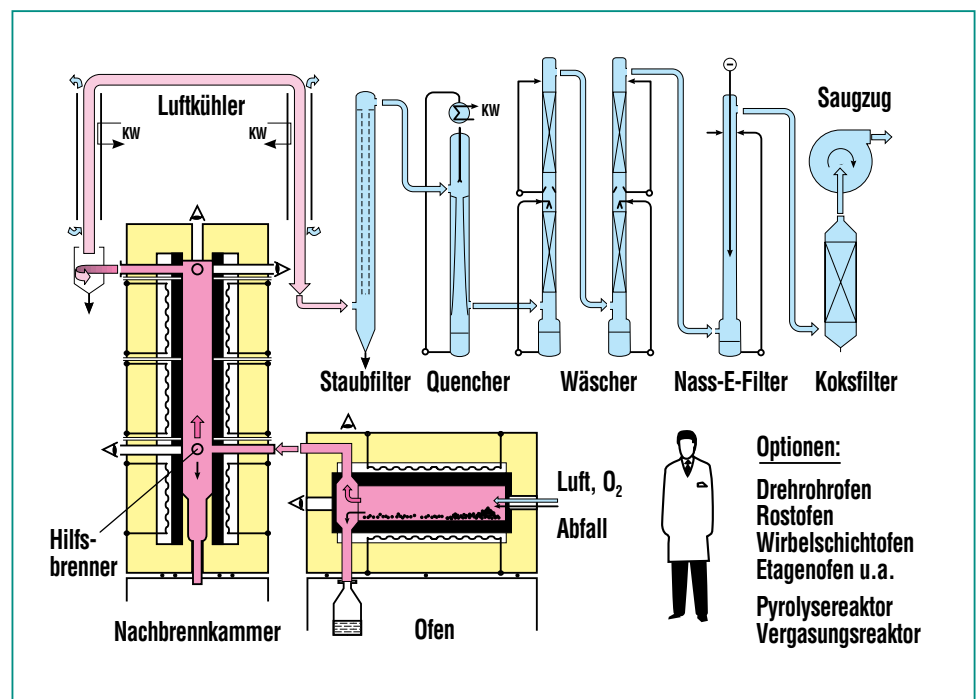


Abb. 3: Vereinfachtes Fließbild der kleinen Drehrohranlage (GUSTAV).

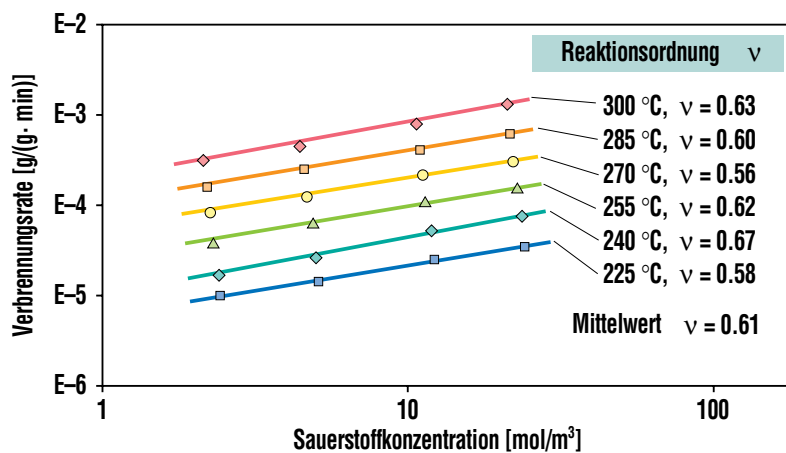


Abb. 4: Verbrennungsraten von Müllpyrolysekoks im chemischen Regime zur Ermittlung der Reaktionsordnung ν von Sauerstoff.

Müllkoks/Sand-Mischung:		Verbrennungsluft:			Sauerstoff:		
Heizwert H_u	MJ/kg (%C)	1(3)	2(6)	2(6)	1(3)	2(6)	2(6)
Temperatur	ca. °C	600	650	650	600	650	800
Rauchgaskonzentration in Vol% am Drehrohrende, der Rest auf 100% ist N_2 :							
O_2	%	10	11	10	34	49	47
CO_2	%	10	10	11	58	45	42
CO	%	0.4	0.4	0.3	0.1	0.1	0.1
C in Asche	%	0.3	0.1	0.2	0.06	0.01	0.01
von C (gesamt)	%	9	2	6	1.9	0.2	0.1

Tab. 4: Vergleichende Versuchsdaten zur Verbrennung von heizwertarmen Müllkoks/Sand-Mischungen im Drehrohr mit Luft oder Sauerstoff.

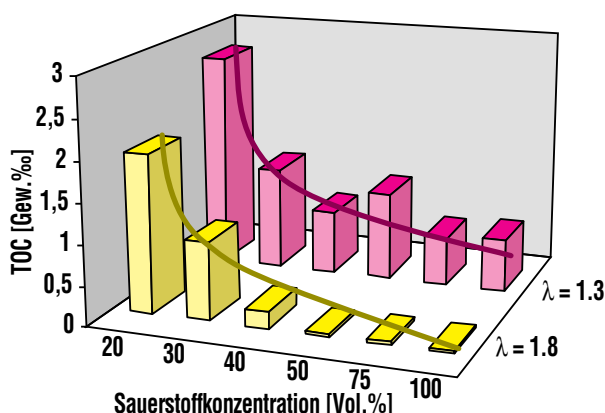


Abb. 5: Müllkoksverbrennung im Drehrohr mit steigender O_2 -Anreicherung der Verbrennungsluft: Der Ascheausbrand wird drastisch verbessert.

Ausbrand: In der kleinen Drehrohranlage wurde der Ascheausbrand mit Verbrennungsluft und Sauerstoff vergleichend untersucht. Heizwertarme Müllkoks/-Sand-Mischungen mit 3, 6 und 12% Kohlenstoff wurden mit 10 bis 30 kg/h Durchsatz und 1 Stunde Verweilzeit im Drehrohr, bei etwa doppelter O_2 -Stöchiometrie und relativ niedriger Temperatur verbrannt (siehe Tab. 4 und Abb. 5) [12].

Das C-Profil längs des Drehrohrs nimmt dabei in grober Näherung exponentiell ab. Der bessere Ausbrand mit Sauerstoff im Vergleich zu Luft, lässt sich dann mit etwa der doppelten Verbrennungsrate erklären, obwohl der O_2 -Gehalt im Rauchgas rund 4 mal größer ist. Das weist auf eine O_2 -Reaktionsordnung um 0.5 hin, wie für das chemische Regime gefunden wurde. Ein guter Rauchgasausbrand wird erst nach dem Durchströmen der Nachbrennkammer bei 900°C erreicht; Schlüsselkomponente dafür ist CO.

Allgemeine Rauchgasemissionen: Um die Schadstoffkonzentrationen im Rauchgas mit den vorgeschriebenen Emissionsgrenzwerten zu vergleichen, müssen sie üblicherweise auf eine Referenzverbrennung mit 11 Vol% Restsauerstoff im Rauchgas umgerechnet werden. Das entspricht etwa dem Doppelten der stöchiometrischen Verbrennungsluftmenge. Damit ist das Rauchgasvolumen und die zulässige Emission pro Tonne Brennstoff festgelegt. Bei einer Verbrennung mit Sauerstoff lassen sich wegen der drastischen Rauchgas-Volumenreduktion die spezifischen Schadstofffrachten

pro Tonne Abfall leichter einhalten und der Stand der Technik eventuell noch unterbieten.

Flugstaub: Während der Verbrennung mit Sauerstoff wurde wegen der geringeren Gasgeschwindigkeit im Drehrohr nur ein kleiner Bruchteil der üblichen Aschemenge ausgetragen. Die allgemeine Verminderung der Staubgehalte im Rauchgas gilt aber möglicherweise nicht für die Schwermetallfracht in den Feinststäuben, weil sie sich durch Desublimation flüchtiger Vorläufer bilden und durch Trägheit schwieriger abscheidbar sind als die gröbere Flugasche.

Organischer **Schwefel und Chlor** werden genauso wie mit Verbrennungsluft zum überwiegenden Teil als SO_2 und HCl ausgetragen. Die in der Rauchgasreinigung zurückgehaltenen Mengen sind vergleichbar und daher der Bedarf an Rückhaltechemikalien ebenfalls.

Stickoxide: Die NO -Konzentrationen in Abb. 6 wurden beim Verbrennen heizwertarmer Koks/Sand-Mischungen im Drehrohr bei steigender O_2 -Anreicherung der Verbrennungsluft bis hin zu reinem Sauerstoff gemessen [12]. Die CO_2 -Konzentrationen im Rauchgas steigen dabei bis über 50 Vol% an. Mit steigendem CO_2 - bzw. O_2 -Gehalt nimmt der NO -Gehalt im Rauchgas zwar monoton zu, aber das NO/CO_2 -Verhältnis, d.h. die spezifische NO -Bildung pro Tonne Brennstoff nimmt ab. Die insgesamt gebildete NO -Menge hängt allerdings stark von der Art des Brennstoffs ab, wie die sehr unterschiedlichen Werte für Müllkoks und Elektronik-

schrötkoks zeigen. Eine weitere Versuchsreihe in Abb. 7 zeigt, dass die spezifische NO -Emission pro Tonne Brennstoff durch Einsatz von Sauerstoff statt Luft auf etwa die Hälfte reduziert werden kann. Die anwachsende NO -Konzentration kann also durch Verminderung des Rauchgasvolumens überkompensiert werden.

Rauchgasrückführung: Durch Verbrennungsversuche in O_2/CO_2 -Gemischen anstelle von O_2/N_2 -Mischungen wurde auch die Rezyklisierung von gekühltem Rauchgas zum Verbrennen heizwertreicher Brennstoffe mit Sauerstoff simuliert. Im Drehrohr wurden beim Ersatz von N_2 durch CO_2 keine gravierenden und unerwarteten Änderungen der Verbrennungsbedingungen festgestellt. Der Einfluss hoher CO_2 und H_2O -Konzentrationen auf die homogene Verbrennung in der Gasphase wurde ebenfalls untersucht [15].

Sicherheit: Der Umgang mit technischem Sauerstoff verur-

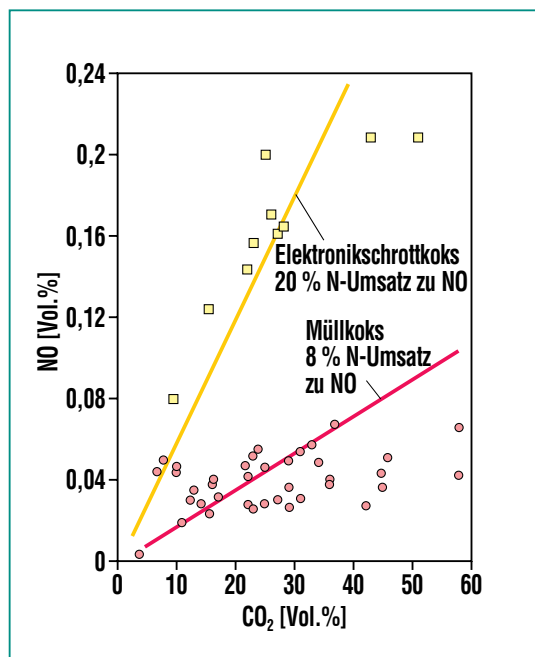


Abb. 6: Müllkoksverbrennung im Drehrohr mit steigender O_2 -Anreicherung der Verbrennungsluft: Die NO versus CO_2 -Konzentration im Rauchgas zeigt, dass die prozentuale Umwandlung des Brennstoffstickstoffs zu NO mit dem Rauchgasvolumen monoton abnimmt. Die Absolutwerte werden von der Art des Brennstoffs – Müllkoks oder Elektronikschrott – maßgebend beeinflusst.

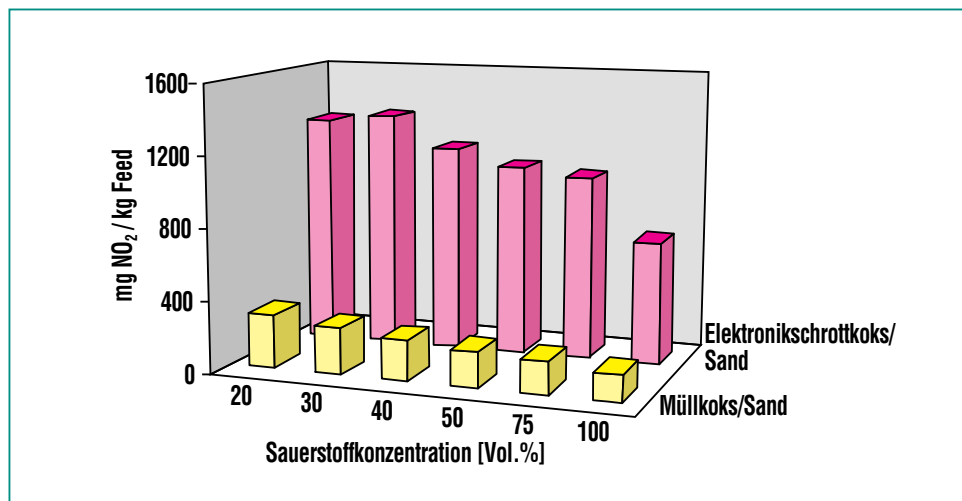


Abb. 7: Müllkoksverbrennung im Drehrohr mit steigender O_2 -Anreicherung der Verbrennungsluft: Die spezifische NO -Emission pro Tonne Abfall nimmt bei der Verbrennung in reinem Sauerstoff an Stelle von Luft auf etwa die Hälfte ab.

sacht bei normalem Druck keine besonderen Sicherheitsprobleme. Nach der Einspeisung in den heißen Ofen wird der Sauerstoff durch die O₂-ärmere Ofenatmosphäre sofort herunterverdünnt. Der O₂-Gehalt muss dann bereits am Ofenausgang im Rauchgas wieder genauso groß wie beim Luftbetrieb sein, um einen vergleichbar guten Gasausbrand zu gewährleisten.

Ausblick

Dem Einsatz von technischem Sauerstoff zur Verbrennung heizwertarmer Abfälle stehen keine grundsätzlichen technischen und wirtschaftlichen Hindernisse im Wege. Allerdings braucht man dafür spezielle auf den O₂-Betrieb

ausgelegte Anlagen. Auf sehr lange Sicht könnte der O₂-Einsatz auch bei der Energiegewinnung aus minderwertigen Brennstoffen Sinn machen, wenn hochwertige Brennstoffe knapp und teuer geworden sind und Sauerstoff etwas billiger. Die optimale Verfahrenstechnik für den O₂-Einsatz bei der Feststoffverbrennung muss aber erst noch entwickelt und erprobt werden. Wesentliche Entwicklungsziele dabei sind:

- Optimale Verbrennungsreaktoren für die verschiedenen Brennstoffe
- Kostenreduktion bei der Sauerstoffgewinnung
- Einfachere Reinigungsverfahren für konzentrierte Rauchgase

- Wärmerückgewinnung aus der heißen Asche; etc.

Wenn die Nutzung großer Mengen CO₂ beispielsweise für die Tertiärförderung von Erdöl ansteht oder CO₂ aus Klimaschutzgründen in der Tiefsee, leeren Erdgaslagerstätten etc. entsorgt werden soll, kann die Verbrennung mit Sauerstoff zur Methode der Wahl werden, weil man sich eine CO₂-Abtrennung aus den hochkonzentrierten Rauchgasen sparen kann.

Literatur

- | | | |
|--|--|--|
| <p>[1] R. Fischer, in K. J. Thomé-Kosmiensky (Hrsg.) „Müllverbrennung und Umwelt 3“, S. 305, EF-Verlag, Berlin 1989</p> <p>[2] F. J. Schweitzer, „Thermoselect-Verfahren zur Ent- und Vergasung von Abfällen“, EF-Verlag, Berlin 1994</p> <p>[3] J. Carl, P. Fritz, (Hrsg.) „Noell Konversionsverfahren zur Verwertung und Entsorgung von Abfällen“, EF-Verlag, Berlin 1994</p> <p>[4] Fa. Martin GmbH, Firmenschrift, München</p> <p>[5] H. Franke, R. Hatami, „gas aktuell 39“, Messer Griesheim GmbH, Öffentlichkeitsarbeit, Frankfurt, Juliheft 1990, S. 12,</p> | <p>[6] BASF Hausmitteilung 1989</p> <p>[7] Z. I. Meza-Renken, FZKA-Bericht 6077 (1998)</p> <p>[8] Z.I. Meza-Renken, E. Henrich, G. K. Wolf, Proc. 9th Int. Conf. on Coal Science, Essen, 7-12. Sept. (1997), S.</p> <p>[9] S. Bürkle, Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) (1998)</p> <p>[10] S. Bürkle, R. Reimert, E. Henrich, Proc. 9th Int. Conf. on Coal Science, Essen, 7-12. Sept. (1997), S. 1237</p> <p>[11] E. Henrich, S. Bürkle, Z. I. Meza-Renken, S. Rumpel, J. Anal. Appl. Pyrolysis 49 (1999) p. 221</p> | <p>[12] E. Henrich, S. Bürkle, S. Rumpel, R. Reimert, Proc. Int. Conf. on Incineration and Thermal Treatment Technologies, 10-14 May, Orlando, USA (1999), p. 169</p> <p>[13] J. Andries, J. G. M. Becht, P. D. J. Hoppesteyn, Energy Convers. Mgmt, Vol. 38 Suppl. (1997), p 117</p> <p>[14] M. Okawa, N. Nimura, T. Kiga, S. Takano, K. Arai, M. Kato, Energy Convers. Mgmt. Vol. 38 Suppl. (1997), p 123</p> <p>[15] I. Braun, FZKA-Bericht 6073 (1998)</p> <p>[16] J. Warnatz, U. Maas, R. W. Dibble, „Verbrennung“, Springer-Verlag, 1997</p> |
|--|--|--|

Einsatz von Methoden der maschinellen Intelligenz zur Regelung von Verbrennungsvorgängen

H. B. Keller, B. Müller, IAI

Stellenwert und Problematik der Müllverbrennung

Gegenwärtig sind in Deutschland 53 Müllverbrennungsanlagen mit einer Jahreskapazität von ca. 12 Millionen Mg in Betrieb. Im Bau oder im Genehmigungsverfahren befinden sich weitere 13 Anlagen [6].

Durch die Verbrennung wird der auf dem Rost befindliche Müll inertisiert, und die flüchtigen Schadstoffe erscheinen in Form von Flugstäuben und Rauchgas. Die in den Flugstäuben und im Rauchgas enthaltenen Schadstoffe müssen aufkonzentriert werden, um entsorgt werden zu können. Dies ist mit hohem technischen und finanziellem Aufwand verbunden.

Neben diesen sogenannten sekundären Maßnahmen der Rauchgasreinigung können durch geeignete Maßnahmen Schadstoffe in der Entstehung vermieden werden (primäre Maßnahmen). Tab. 1 zeigt das Verbesserungspotential verschiedener primärer und sekundärer Maßnahmen zur NO_x Reduktion.

Dieser Artikel gibt eine Übersicht über die Arbeiten am IAI zur Verbesserung der Prozessführung in der Thermischen Abfallbehandlung (TAB) durch primäre Maßnahmen mit Methoden der Maschinellen Intelligenz in Verbindung mit einer Video- und Infrarotbildverarbeitung. Hierdurch können u. a. Störungen beim Abbrand des Mülls und dadurch die Erfordernis für manuelles Eingreifen der Operateure in die Regelung der Verbrennung wesentlich verringert werden.

Fuzzy Control zur wissensbasierten Regelung: Optimierung des Ausbrands

Problem

In der TAB treten immer wieder Situationen auf, bei denen unverbrannte Müllanteile aus dem Hauptverbrennungsbereich in die Nachbrennzone (Abb. 1) wandern. Bei größeren Anteilen übernimmt normalerweise der Operateur die Aufgabe, im zugehörigen Bereich entsprechend die Luftzufuhr der entsprechenden Unterwindzonen (Abb.1) zu erhöhen und evtl. die Rostgeschwindigkeit zu reduzieren. Wird nicht korrigierend eingegriffen, so fallen nicht vollständig verbrannte Müllanteile in den Schlackeaustrag. Dies kann dazu führen, dass die gesetzlichen Anforderungen an die Reststoffe (Schlacke) hinsichtlich

einer Wiederverwertbarkeit nicht eingehalten werden können.

Zur automatischen Sicherstellung des Ausbrandgrades und der Erfüllung der TA Siedlungsabfall in der TAB wurde ein System entwickelt, das visuelle Informationen verarbeitet (Keller u. a. [8]). Eine Videokamera liefert ein perspektivisches Bild der Nachbrennzone. Die daraus auszuwertenden Bereiche können mit grafischen Methoden frei in Zonen und Unterteilungen festgelegt werden. Innerhalb eines Regelzyklus werden die Operationen Bilderfassung, Bildverarbeitung, Regelalgorithmus und Prozess-Leitsystem-Kommunikation durchgeführt. Zur Optimierung der Regelung durch Luftzufuhr wurde ein Fuzzy Regler entwickelt und in dieses System integriert. Abb.1 zeigt eine Übersicht über das System.

Primärmaßnahmen		
Maßnahmen	Reduktionspotential	Technische Reife
Homogenisierung des Brennguts	bis etwa 20%	Stand der Technik
Rauchgasrückführung	bis etwa 20%	Stand der Technik
Stufung und Regelung der Luftzugabe	bis etwa 20%	Stand der Technik
Sekundärmaßnahmen		
Maßnahmen	Reduktionspotential	Technische Reife
Selektive nichtkatalytische Reduktion (SNCR)	bis etwa 80%	Stand der Technik
Selektive katalytische Reduktion (SCR)	bis etwa 90%	Stand der Technik
Aktivkoksverfahren	bis etwa 60%	In Erprobung
Nassverfahren	bis etwa 70%	In Erprobung

Tab. 1: Primär und Sekundärmaßnahmen zur NO_x Reduktion.

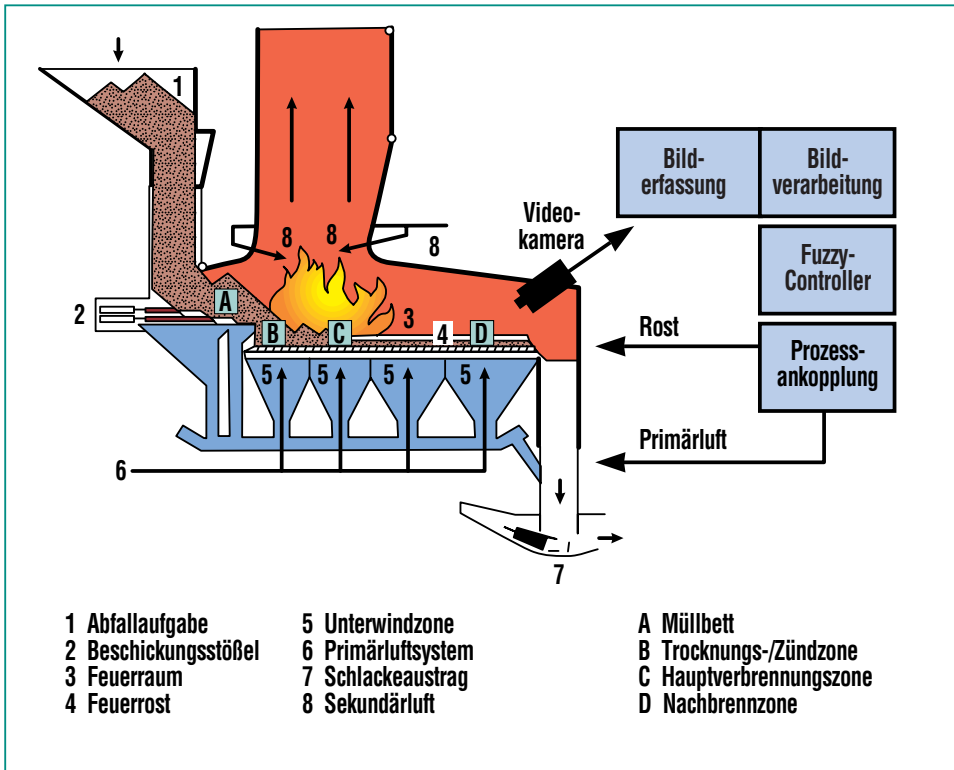


Abb. 1: Systemübersicht Fuzzy Ausbrandregelung.

Der Fuzzy Regler

Fuzzy Control liefert die Möglichkeit, Prozessgrößen als linguistische Variablen zu verarbeiten. Somit kann Expertenwissen direkt in Regeln einer Fuzzy Regelbasis überführt werden. Ein so er-

stellter Fuzzy Regler hat i.d.R. ein nichtlineares Regelkennfeld, und ist somit bei nichtlinearen Regelstrecken einem linearen Regler überlegen.

Der Fuzzy Regler soll unverbranntes Material anhand der

Größe der brennenden Fläche und der auf diese Fläche bezogenen Intensität erkennen und danach die Luftzufuhr verändern. Mit Hilfe der Änderung der Summe der Intensitäten soll die Luft so lange erhöht werden, bis der Müll maximal brennt. Ist dies der Fall, so ändert sich die Intensität nicht mehr wesentlich. Mit Hilfe der vergangenen Werte der Änderung der Luftzufuhr sollen unnötig große Stellgrößenänderungen vermieden werden, die durch Verpuffungen und Flackern entstehen könnten. Der eingesetzte Fuzzy Regler besitzt vier Eingangsgrößen und eine Ausgangsgröße. Die Eingangsgrößen sind die erkannte Fläche (Größe des Brandherdes ΣA), die darauf bezogene Intensität (Intensität des Brandherdes $\Sigma I / \Sigma A$), die frühere Änderung der Summenintensität ($D\Sigma I$) und die frühere Änderung der Luftzufuhr (DL_{alt}).

Die Ausgangsgröße DL_{neu} ist eine Änderung der Luftzufuhr, die zum absoluten Wert der Luftzufuhr hinzugerechnet wird und zwischen den Größen MIN und MAX liegt. Im Prozessleitsystem wird dieser Wert in eine additive Komponente umgerechnet, die zu einem Grundwert der Luftzufuhr addiert wird.

Die maßgeblich für das Regelverhalten entscheidenden Größen sind die Zugehörigkeitsfunktionen für die Fläche und die Intensität. Abb. 2 zeigt den Aufbau des Fuzzy Reglers.

Eine weitere Verbesserung des Abbrandverhaltens lässt sich durch die Einbeziehung der Rost-

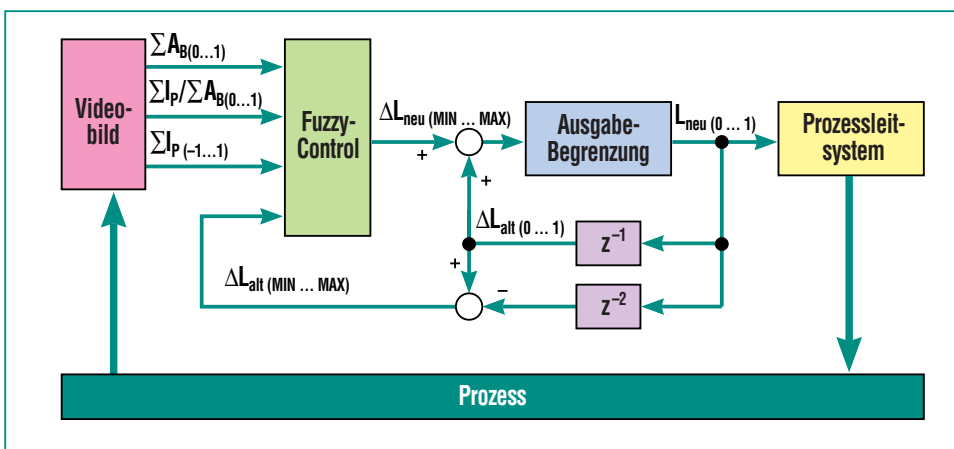


Abb. 2: Systemstruktur.

geschwindigkeit von Hauptverbrennungs- und Nachbrennzone in die Regelung erreichen. Allerdings kann die Rostgeschwindigkeit nur in begrenztem Umfang geändert werden, da es sonst zu Aufstauung des Mülls kommen kann.

Das vorgestellte System läuft seit einiger Zeit als Teil der Feuerleistungsregelung an einer großindustriellen Müllverbrennungsanlage (MVA) mit großem Erfolg. Bei wechselnder Müllzusammensetzung treten immer wieder Situationen auf, bei denen nicht vollständig verbrannte Müllanteile in die Nachbrennzone wandern. Hier greift das System frühzeitig ein und berechnet für die eingesetzten konventionellen Luftregler neue Sollwerte entsprechend der vorliegenden Situation. Dadurch wird der Ausbrand deutlich verbessert.

Neuronale Netze zur Modellierung und Simulation

Das Ziel einer Feuerleistungsregelung ist neben einer möglichst hohen Energieausbeute eine gleichmäßige, schadstoffarme Verbrennung. Eine schwankende Verbrennung kann zu erhöhter Schadstoffemission führen. Klassische Feuerleistungsregelungen arbeiten mit einer Feedback-Regelung, d.h. es wird auf Abweichungen von Ist- und Sollzustand reagiert. Ein neuartiger Ansatz ist die Einführung einer Feed-Forward Komponente, die mit Hilfe von Prozessvorhersagen und somit vorausschauend arbeitet. Hierfür ist ein Modell des Verbrennungsprozesses erforder-

lich. Eine umfassende Modellierung des Verbrennungsprozesses ist aufgrund der komplexen physikalischen und chemischen Zusammenhänge bislang nicht möglich.

Neuronale Netze sind informationsverarbeitende Strukturen, die aufgrund ihrer Fähigkeit zur Selbstorganisation funktionale Beziehungen in einer Trainingsphase lernen können. Dieses erlernte „Wissen“ kann in einer Ab- rufphase auf neuen Daten angewendet werden.

Hier werden Neuronale Netze verwendet, die die Beziehung von gegenwärtigem Prozesszustand zu einem Folgezustand implizitbeschreiben. Ein trainiertes Neuronales Netz stellt somit ein subsymbolisches Modell des Prozesses dar, das zur Unterstützung vorhandener Regelkreise eingesetzt werden kann.

Simulation / Modellierung

Das Prozessleitsystem der MVA liefert alle 10 sec einen Datensatz aus 28 Prozessparametern. Datensätze wurden in einer einwöchigen Messkampagne erfasst. Nach einer Reduktion der Daten durch Vorverarbeitung (Mittelung auf 1 min) und a priori Selektion einzelner Parameter wird ein Prozesszustand durch einen Datensatz als Eingabe an ein Neuronales Netz repräsentiert. Das Netz sagt aus dem aktuellen Zustand einen Folgezustand vorher, der als Ausgabe des Netzes auf die Eingabe zurück gekoppelt werden kann (Mehrschrittprädiktion). Neben dem Systemzustand erhält das Netz zusätzlich die Stellgrößen u des Prozesses als Eingabe (Abb. 3)

Um den Rechenaufwand zu minimieren, soll das Netz nur so viele

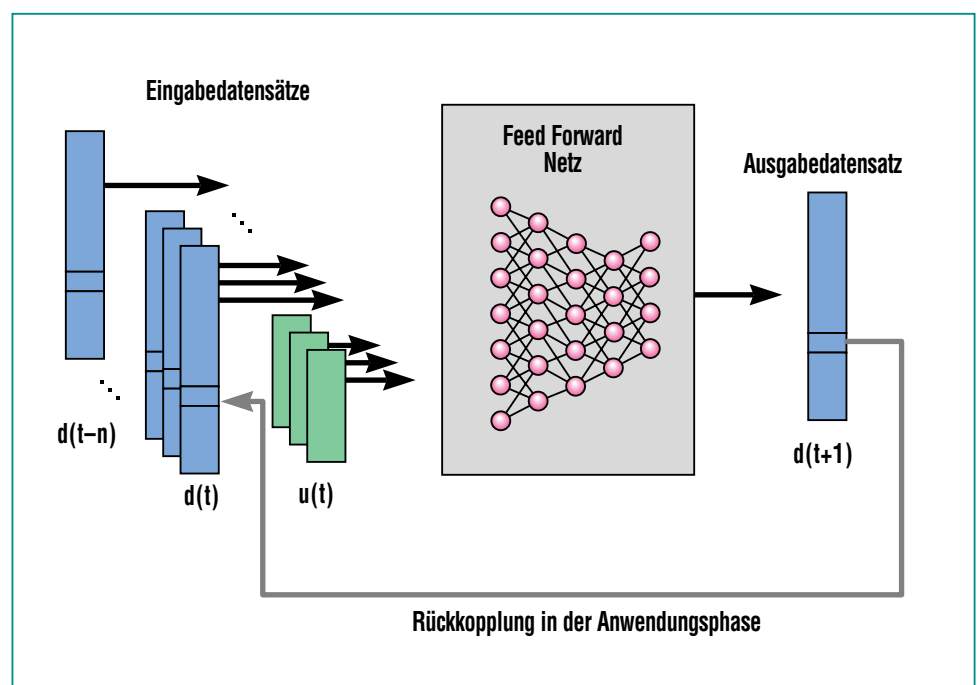


Abb. 3: Neuronales Netz als statische Abbildung mit externer Dynamik.

Neuronen und Verbindungen enthalten wie zur Beschreibung des Prozesses erforderlich sind. Hierzu wurde das Netz bzgl. seiner Topologie (Verbindungen, Eingabeneuronen) mit evolutionären Algorithmen optimiert.

Die Simulationen wurden mit dem „Stuttgarter Neuronaler Netz-Simulator“ durchgeführt, die Optimierungen mit evolutionären Algorithmen entstanden mit dem Programmsystem ENZO (Evolutionary Network Optimizing System, Universität Karlsruhe).

Simulationsergebnisse zeigen eine ausreichende Vorhersagegenauigkeit bei einer Iterationstiefe von 5 Zeitschritten (5 min).

Ermittlung der Stellgrößen aus dem Modell

Um eine einfache modellbasierte Regelung zu realisieren, genügt die Simulation der Führungsgrößen Dampfleistung und O_2 -Gehalt im Rauchgas. Es wird das als Simulator trainierte Neuronale Netz benutzt, um Stellgrößen zu erhalten, die den Prozess bzgl. der Führungsgrößen in eine Sollvorgabe überführen.

Hier bieten sich mehrere Möglichkeiten an, unter Sollwertvorgabe aus dem Neuronalen Modell Stellgrößen zu ermitteln. Da das Netz differenzierbar ist, können über Gradientenabstiegsverfahren die Differenzen am Ausgang des Netzes durch das Netz zum Eingang propagiert werden, um dort eine verbesserte Schätzung für die benötigten Stellgrößen zu erhalten. In der Praxis hat sich jedoch ein einfaches „Ausprobieren“ von Stellgrößenkombinationen bewährt.

Die so ermittelten Stellgrößen umfassen die Vorschubgeschwindigkeit des Rostes, Müllaufgabe und Luftzuführung. Da nur 2 Führungsgrößen zur Verfügung stehen (O_2 -Gehalt im Rauchgas und Dampfmenge), dürfen aus Gründen der Wohldefiniertheit auch nur 2 Stellgrößen ermittelt werden. In diesem Fall werden Vorschubgeschwindigkeit des Rostes und Müllaufgabe gekoppelt, wie dies auch bei der bisherigen Regelung der Fall ist.

Bestimmung einer optimalen Handlungssequenz

Da die Dynamik des Prozesses zu unerwünschten Nebeneffekten (Schwingverhalten) führen kann, muss die Auswirkung des Eingriffs auf den Prozess abgeschätzt werden. Dazu wird durch mehrfache Anwendung der Stellgrößen auf die Simulation eine Handlungssequenz aufgebaut. Ausgehend vom aktuellen Wert der Führungsgrößen S^t werden mehrere temporäre Sollwerte in Richtung des endgültigen Sollwerts S^* vorgeschlagen. Die Stellgrößen werden durch Parameterabschätzung bestimmt, wie im vorigen Abschnitt beschrieben. Diese Operationen werden

bei einem Vorhersagehorizont von vier Iterationen durchgeführt. Danach werden die Trajektorien mit Hilfe einer Gütefunktion gemessen und die Trajektorie, die das Kriterium am besten erfüllt, wird ausgewählt und der erste temporäre Sollwert angewandt (Abb. 4). Das Kriterium besteht in diesem Fall darin, geringe Stellgrößenänderungen zu verwenden und den Sollwert S^* so schnell wie möglich zu erreichen. Dies geschieht durch Minimierung der Gütefunktion

$$J(U) = \sum_{t=T_0}^{T_1} k_1 (S(t) - S^*)^2 + k_2 U_2(t)^2 + k_3 T_3(t)^2$$

mit $U = (U(T_0), \dots; U(T_1))$, wobei k_1, k_2, k_3 Gewichtungen der einzelnen Terme darstellen. Durch Einbeziehen der Stellgrößenänderungen $U(t)$ werden große Stellgrößenänderungen bestraft. $T(t)$ ist ein Vertrauensindex, der ein Abweichen des Arbeitspunkts vom Arbeitspunkt des trainierten Modells anzeigt. Hiermit werden also Modellunsicherheiten bestraft. Eine starke Gewichtung dieses Koeffizienten führt zum Favorisieren von Lösungen, deren Trajektorie sich nahe am Arbeitspunkt des trainierten Modells befinden.

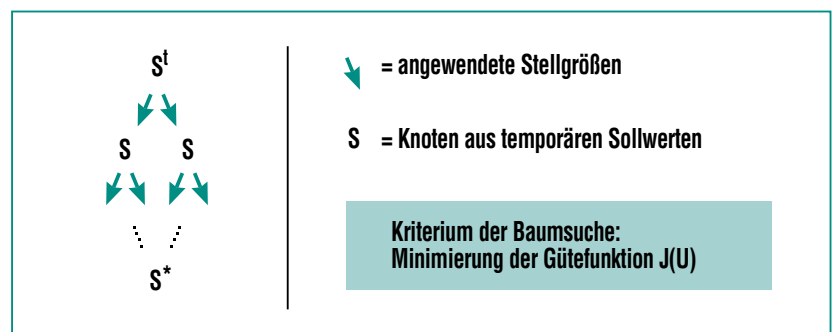


Abb. 4: Schematische Darstellung des Versuchs der Bestimmung einer geeigneten Referenztrajektorie.

Dieses Baumsuchverfahren hat einen exponentiellen Aufwand hinsichtlich der Suchtiefe (Anzahl der Äste). Um dieses Verfahren echtzeitfähig zu machen wurde eine algorithmische Optimierung mit dem A* Algorithmus [9] implementiert. Die Prozedur A* ist eine Branch-and-Bound-Suche mit einer Schätzung der verbleibenden Entfernung nach dem Prinzip der dynamischen Programmierung. Wenn die Schätzung der Restentfernung ein unterer Grenzwert der tatsächlichen Entfernung ist, dann ergeben sich aus A* optimale Lösungen.

Das Finden der optimalen Lösung wird mit A* erheblich beschleunigt. Falls bis zum Einstellen der neuen Stellgrößen diese noch nicht zur Verfügung stehen, so kann die bis dahin gefundene Lösung verwendet werden. Somit ist die Echtzeitfähigkeit des Verfahrens gewährleistet.

Validität des Modells

Die Daten zum Training wurden von dem geregelten Prozess entnommen. Daher besitzt das Modell nur eine lokale Gültigkeit um den gefahrenen Arbeitspunkt. Eine andere Regelstrategie – z. B. wegen geänderter Müllzusammensetzung – wird das bestehende Modell für den praktischen Einsatz unbrauchbar machen. Daher wird mit einer Abstandsbestimmung die Ähnlichkeit neuer Daten mit den Trainingsdaten abgeschätzt. Dies kann zur Erstellung eines Vertrauensindex für das Simulationsergebnis genutzt werden, um bei zu großen Abweichungen vom trainierten Arbeitspunkt auf ein anderes Modell zu wechseln.

Um ein über mehrere Arbeitspunkte gültiges Simulationsergebnis zu erhalten, bietet sich der Einsatz von Multi-Modellen an, bei denen jedes einzelne Modell für einen speziellen Arbeitspunkt trainiert wird.

Mit dem entwickelten Prototyp wurde ein on-line Testbetrieb an einer großindustriellen Anlage durchgeführt. Die Ableitung der Eingriffssequenzen konnte eindrucksvoll demonstriert werden, für saisonale Schwankungen der Müllzusammensetzung ist noch ein übergeordnetes Qualitätssicherungskonzept zu realisieren.

Für eine frühzeitige Erkennung der thermographischen Auswirkungen der unterschiedlichen Müllzusammensetzung wird ein System zur Online-Auswertung von Infrarot Kamerabildern entwickelt, aus dem zusätzliche Prozessgrößen generiert werden, die dem gegenwärtigen System eine höhere Vorhersagequalität geben (Siehe folgender Abschnitt) sollen.

Infrarot-Bildverarbeitung zur Gewinnung zusätzlicher Prozessgrößen

Eine Hauptursache für die starken Schwankungen im Betrieb von MVAs ist in der sehr heterogenen Zusammensetzung und den unterschiedlichen Eigenschaften des Brennstoffs Müll begründet. Die Dichte und Größe der Müllteile schwankt ständig, so dass aus einem bestimmten, in den Brennraum eingebrachten Müllvolumen nicht auf die eingebrachte Müllmasse geschlossen werden kann. Die Feuchte des Mülls variiert stark, was zu unterschiedlichen Trocknungszeiten

führt. Die chemische Zusammensetzung des Mülls und damit der Heizwert hängt stark von der jeweiligen Müllfraktion (Sperrmüll, Hausmüll etc.) ab. Aus diesen Gründen ändern sich die für eine vollständige Oxidation des Brennstoffs nötige Sauerstoffmenge sowie die bei der Reaktion freiwerdende Energie und damit die Dampfmenge ständig. Um mehr Information über den Zustand der Verbrennung zu erhalten, wurde eine Infrarotkamera mit dem Ziel installiert, aus den Infrarotaufnahmen weitere Merkmale abzuleiten, die als Prozessgrößen gelten.

Die Infrarotkamera ist auf den Verbrennungsrost gerichtet um von dort eine Temperaturverteilung der Verbrennungszonen zu erhalten. Ein spezieller Flammenfilter verhindert störende Überlagerungen von IR-Strahlung aus den Flammen. Abb. 5 zeigt ein IR-Bild mit Sicht auf den Verbrennungsrost.

Eine Zuordnung von gemessener IR-Strahlungsleistung zu Temperaturen kann nur unter der Annahme einer konstanten Emissi-

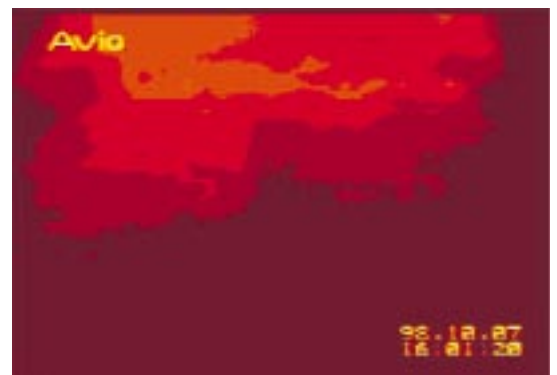


Abb. 5: Infrarotaufnahme des Brennbetts. Die Kamera erfasst Temperaturen von 700-1000°C.

on des Brennmaterials gemacht werden.

Über die IR Kamera lassen sich zusätzliche Parameter zur Situation der Verbrennung auf dem Rost gewinnen. Durch eine Binarisierung lässt sich die brennende Fläche bestimmen. Diese Fläche lässt sich charakterisieren durch folgende Parameter:

- Lage des Brennbetts
- Grad des Zusammenhängens des Brennbetts
- Schiefe des Brennbetts.

Diese Parameter können als zusätzliche Führungsgrößen bei der Regelung der Lage der Hauptverbrennungszone herangezogen werden.

Ergänzend zu einer prädiktiven Regelung kann das Prozessverhalten durch ein frühzeitiges Erkennen von Zustandsänderungen (primär in Form von im kontinuierlichem Betrieb nicht messbaren Heizwertschwankungen) verbessert werden.

Das zeitliche Verbrennungsverhalten wird über eine überwachte Klassifikation analysiert. Hierzu wird ein Müllelement (eine auf dem Rost liegende Müllfraktion) mit der Kamera beobachtet und sein Emissionsverhalten vom Rostanfang bis zum Verlassen des Rostes aufgezeichnet. Dann wird die Luftmenge ermittelt, die für dieses Müllelement insgesamt bereitgestellt wurde. Für jedes Rostsegment gibt es eine individuelle Luftversorgung. Aus den vier Luftversorgungen pro

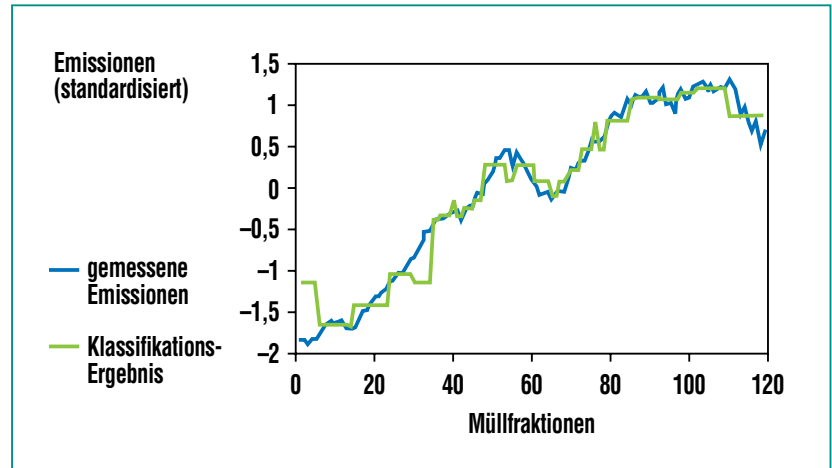


Abb. 6: Emission und Klassifikationsergebnis.

Rosthälfte wird eine Luftverteilung über die Länge des Rostes linear interpoliert.

Es wird angenommen, dass die Massenumsatzrate proportional zur gemessenen IR-Strahlungsintensität ist. Unter Einbeziehung eines Modells, das die Abhängigkeit der Luftzufuhr zur Massenumsatzrate und damit zu den IR-Emissionen beschreibt, wird die Luftzufuhr herausgerechnet. Diese – von den Stellgrößen invariante – Trajektorie wird mit einem Neuronalen Netz klassifiziert. Klassifikationsmerkmal ist hierbei die Gesamtabgabe an IR-Strahlung.

Das Netz soll die funktionale Abbildung aus Merkmalen der Trajektorie und der Gesamtheit der IR-Emissionen für ein Müllelement lernen. Als Merkmale werden der Zeitpunkt der maximalen Verbrennungsintensität, sowie der Betrag der maximalen IR-Intensität, bereinigt um den Einfluss der Luftzufuhr verwendet. Es werden also Paare gesammelt $((x,y)_{max}, f E(x)dx)$. Abb. 6 zeigt

für 120 Müllelemente die tatsächlich abgegebenen IR-Emissionen und die durch überwachte Klassifikation gefundenen Klassenzugehörigkeiten.

Als Klassifikator diente ein Counterpropagation Netz mit 25 Neuronen, wobei jedes Neuron eine Klasse definierte. Aufgrund des bislang zur Verfügung stehenden geringen Messumfangs muss die Klassifikation noch auf einer größeren Messreihe validiert werden.

Maschinelle Modellierung zur automatischen Ableitung kausaler verhaltensorientierter Systembeschreibungen

Während Informationsverarbeitung mit Neuronalen Netzen auf subsymbolischer Ebene (unter Verarbeitung numerischer Daten) abläuft, befassen sich symbolische Lernverfahren mit der expliziten Generierung und Verarbeitung von Regeln.

Aus der Sicht des (symbolischen) Maschinellen Lernens ist die automatische Modellbildung unter die Kategorie „Lernen durch Beobachtung und Entdeckung“ einzuordnen und stellt damit eine extrem schwierige Lernaufgabe dar.

Dies beginnt bereits damit, dass nicht klar ist, welches die zu betrachtenden Basismerkmale sind, d.h. auf welcher Grundlage der Computer überhaupt nach Zusammenhängen suchen soll. Geht man am besten von einzelnen Messwerten, von Messwertintervallen, von ganzen Messwertreihen oder geeigneten aggregierten Größen als Attributen aus? Damit besteht die erste Aufgabe eines automatischen Modellierungssystems in der Erzeugung einer geeigneten symbolischen Repräsentation der gemessenen Größen (Definition der Merkmale), die dann die Grundlage für die gewünschte Analyse und Regelgenerierung darstellt. Dieser Übergangsschritt von der numerischen zur symbolischen Form ist ein wesentlicher Unterschied gegenüber der Suche nach implizitem Wissen in Datenbanken (knowledge discovery in databases, data mining) dar.

Des weiteren ist bei der Modellierung eines dynamischen Systems die Zeit als wichtiger Parameter zu berücksichtigen. Dies bedeutet, dass Beziehungen zwischen verschiedenen Systemgrößen nicht statisch sind, sondern verschiedenartige, zustandsabhängige Beeinflussungen mit gewissen Zeitverzögerungen anzunehmen sind. Da die Berücksichtigung der gesamten Vergangenheit in jedem Trainingsbeispiel

aus Komplexitätsgründen unmöglich ist, müssen typische, relevante Situationen mit ihrer relevanten Vergangenheit ausgewählt und klassifiziert werden. An dieser Stelle kommt erschwerend hinzu, dass kein Lehrer zur Verfügung steht, der dies leisten könnte. Das Lernen geschieht vielmehr unüberwacht.

Das C³R-System

Aufgrund der eben genannten Probleme bei der direkten Anwendbarkeit vorhandener Verfahren wurde ein mehrstufiges System entwickelt, das im folgenden vorgestellt wird.

Die maschinelle Modellierung von Prozessabhängigkeiten im C³R-System (Childrens Cognitive Learning for Causal Reasoning about Dynamic Systems, Keller u. a. [3]), in dessen Entwicklung auch elementare Ergebnisse kognitionspsychologischer Experimente eingingen, zeichnet sich durch die Kombination von symbolischen (Maschinelles Lernen), subsymbolischen (analog neuronalen Netzen) und rein numerischen (Clustering) Verfahren aus.

Als Eingabe in das C³R-System dienen Zeitreihen der gemessenen Größen oder direkt Muster von beobachtbaren Größen aus dem (technischen) System. Das System besitzt mehrere adaptive dynamische Systemparameter, für die Initialisierungswerte eingegeben werden können. Die Ausgabe des C³R-Systems besteht aus einer Visualisierung der erkannten kausalen Abhängigkeitsbeziehungen in Form eines (gerichteten) Kausalitätsgraphen und

eine Darstellung der funktionalen Abhängigkeitsbeziehungen durch eine Menge unscharfer bereichsweiser Transformationsregeln.

Ergebnisse

Ergebnisse wurden aus Beispieldaten der halbertechnischen Versuchsanlage TAMARA zur thermischen Abfallbehandlung abgeleitet. Ein Ergebnis war das dynamische Übergangsverhalten von Prozessgrößen; nach der Verringerung der Gesamt-Müllmasse ergab sich eine Zunahme der O₂-Rohgas-Konzentration. Dieser Zusammenhang ist durchaus plausibel, denn wird weniger Müll verbrannt, so wird auch weniger Sauerstoff verbraucht, folglich steigt die Sauerstoffkonzentration im Rohgas. Im folgenden wird eine andere vom System maschinell abgeleitete Regel wiedergegeben, die angibt, dass die Abgastemperatur bei abnehmender Müllmasse sinkt. Die Angaben in eckigen Klammern geben die Wertebereiche an, in denen die Größen liegen:

WENN Müllmasse_{Gesamt} in [253,4; 270,5]
UND Veränderung = Abnahme nach [235,4; 252,2]
innerhalb von
50,6 ± 20,5 Sekunden
UND Abgastemperatur in [941,7; 988,7]

DANN Veränderung = Abnahme nach [930,1; 971,4]
mit einer Verzögerung von
540,0 ± 24,5 Sekunden,
innerhalb von
335,0 ± 26,9 Sekunden.

Vertrauensgrad: 0,667.

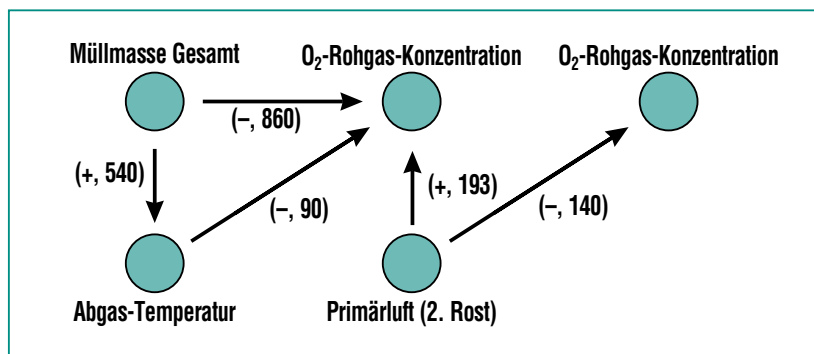


Abb. 7: Kausalitätsgraph.

Alle abgeleiteten Zusammenhänge werden in einem Kausalitätsgraphen (Abb. 7) visualisiert. Die Kanten dieses Kausalitätsgraphen sind durch eine qualitative Beschreibung des Veränderungsverhaltens (gleichartig +, gegenläufig -) und durch die abgeleitete Verzögerungszeit gewichtet.

Die abgeleiteten Ergebnisse stimmen mit den bekannten Abhängigkeiten überein:

- Die Gesamt-Müllmasse und die Primärluft sind exogene Größen.
- Die Abgas-Temperatur, die O₂- und CO₂-Rohgas-Konzentrationen sind endogene Größen.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die vom C³R-System beispielhaft erkannten Beziehungen die Leistungsfähigkeit maschineller Lernverfahren in der

automatischen Ableitung von Prozesszusammenhängen zeigen. Auf diese Weise abgeleitete Regeln können als Wissensbasis für eine effizientere und umweltorientierte Prozessführung genutzt werden.

Zusammenfassung und Ausblick

Die Anwendung von Verfahren der Maschinellen Intelligenz in regelungstechnischen Anwendungen ermöglicht eine neue Qualität in der Automatisierung komplexer Prozesse. Die praktischen Ergebnisse zeigen darüber hinaus einen deutlichen finanziellen Nutzen. Allerdings erfordert der Einsatz dieser Verfahren sowohl ein fundiertes Know-how im Anwendungsbereich als auch in der zu Grunde liegenden Theorie der eingesetzten Verfahren.

Begriffserläuterung

Branch-and-Bound-Suche

(Verzweige und begrenze) Suchverfahren nach dem günstigsten Weg unter Einbeziehung der Kosten des bisherigen Weges. Ist ein Weg samt seiner Kosten bekannt, werden Alternativwege nur noch betrachtet, wenn die Kosten des neuen Teilweges kleiner sind als die Gesamtkosten des bereits gefundenen Weges.

Counter-propagation

Typ eines Neuronalen Netzes mit lokal konstanter Repräsentation

Clustering

Unterteilung von Datensätzen in Gruppen

Feedback Regelung

Aus dem Vergleich der Führungsgröße (Sollwert) mit der fortlaufend erfassten Regelgröße (Istwert) wird ein Stellgriff (Veränderung der Stellgröße) im Sinne einer Angleichung der Regelgröße an die Führungsgröße vorgenommen.

Führungsgröße

Größe, welche den Sollwert für die Regelgröße vorgibt.

Regelgröße	Prozessgröße, deren Wert durch Regelungseingriffe der Führungsgröße angeglichen werden soll.	(Künstliches) neuronales Netz	Technische Realisierung biologisch motivierter Modelle des Zentralnervensystems zur Informationsverarbeitung in technischen Anwendungen. Kennzeichen sind lernfähige, verteilte, parallele Strukturen aus einfachen Elementen, den Neuronen.
Fuzzy Control	Art einer Regelung, bei welcher der Regelalgorithmus auf Fuzzy Logik basiert. Die Vorgehensweise erfolgt meist in einem dreistufigen Verfahren: Fuzzifizierung, Inferenz und Defuzzifizierung.	prädiktive Regelung	Regelung unter Einsatz einer vorhersagenden Komponente (Prognose) zur besseren Abschätzung der dynamischen Effekte der Regeleingriffe
Fuzzy Logik	Konzept und Methoden zur Verarbeitung unscharfen Wissens anhand unscharfer Mengen.	subsymbolische Informationsverarbeitung	Informationsverarbeitung, deren Grundidee das Auflösen der Symbole durch Repräsentation von Attributen bzw. deren Werten zur Beschreibung der Objekte einer Anwendungswelt. Verarbeitung durch verteilte Repräsentation auf Mikrostrukturen auf Basis primitiver Verarbeitungseinheiten (Neuronen).
Gradientenabstiegsverfahren	Iteratives Optimierungsverfahren, das die Differenzierbarkeit einer Fehlerfunktion ausnutzt, um sich sukzessive einem Optimum anzunähern.	symbolische Informationsverarbeitung	Methode, bei der eine schrittweise und nachvollziehbare Abarbeitung eines expliziten Algorithmus (Wissensrepräsentation mit explizitem Objektbezug) zum Ziel führt.
Gütefunktion	Funktion zur Bewertung der Qualität einer Lösung.	Trajektorie	Zeitlicher Verlauf eines Vektors im Zustandsraum, zeitliche Abfolge der Werte einer Zustandsgröße über einen anderen Parameter.
Linguistische Variable	Größe, deren Werte keine Zahlen (wie bei deterministischen Variablen) oder Verteilungen (wie bei Zufallsvariablen), sondern sprachliche Konstrukte (Terme) sind. Zur Verarbeitung der linguistischen Variablen, deren Werte (Terme) durch Wörter der Umgangssprache (wie: hoch, tief, mittel) definiert sind, werden pro Term (z.B. mittel) jeweils durch eine unscharfe Menge (Fuzzy Set) dargestellt.	Zugehörigkeitsfunktion	Bestimmt den Wert der Terme einer linguistischen Variablen. In der klassischen Mengenlehre gibt es nur zwei Werte der Mengenzugehörigkeit, nämlich 0 oder 1. Die Zugehörigkeitsfunktion liefert kontinuierliche Werte einer Mengenzugehörigkeit, und beschreibt somit eine unscharfe Menge.
Maschinelle Intelligenz	Subsummierung der auf einem Rechner einsetzbaren Verfahren und Konzepte zur Simulation von Problemlösungsfähigkeiten.		
Maschinelles Lernen	Bereich, der sich mit der automatischen Ableitung (induktiv/deduktiv) von Wissen beschäftigt.		

Literatur

- [1] B. Müller, H. Keller,
*Proc. of the Internat. Conf. On
Engineering Applications of
Neural Networks (EANN '96),
London, GB, June 17-19, 1996,*
S. 87 - 90.
- [2] H. Keller, B. Müller,
*Mess- und Automatisierungs-
technik: Kongress, Baden-
Baden, 10.-11. Sept. 1996,*
Düsseldorf: VDI-Verlag, 1996,
S. 669-74, (VDI-Berichte; 1282).
- [3] H. B. Keller, A. Fick,
KI, Sonderheft KI und Umwelt,
Heft 2/98
- [4] T. Behrendt,
*„Thermodynamische Model-
lierung des Betriebsverhaltens
von Hausmüllverbrennungs-
anlagen am Beispiel TAMARA“.*
VDI Fortschrittberichte. Reihe 15,
Umwelttechnik. Nr. 99. 1993.
- [5] Thome-Kozmiensky
„Thermische Abfallbehandlung“,
EF- Verlag für Energie und
Umwelttechnik GmbH,
Berlin 1994
- [6] [http://www.itas.fzk.de/
deu/projekt/achte_97.htm](http://www.itas.fzk.de/deu/projekt/achte_97.htm)
- [7] E. Kugele, H. Keller, F. Albert,
*„Verbesserung der Prozess-
führung von Müllverbrennungs-
anlagen“ Primärbericht,*
Kernforschungszentrum
Karlsruhe, 1993.
- [8] H. B. Keller, W. Albert,
S. 15-17, Wasser&Boden, 6/97
- [9] Winston, H. Patrick,
„Artificial intelligence“
Addison-Wesley, 1984.

Das UPSWING-Verfahren – Der Schlüssel zur kostengünstigen Abfallverbrennung

J. Vehlow, H. Hunsinger, S. Kreis, H. Seifert, ITC

Einleitung und Problemstellung

Seit zu Beginn der neunziger Jahre die Emissionsgrenzwerte erheblich verschärft wurden [1], sind Abfallverbrennungsanlagen mit immer komplexeren Gasreinigungssystemen ausgerüstet worden. Das Bestreben der Anlagenplaner und -bauer war – gemäß dem Schlagwort „best available technology“ – auf eine möglichst weite Absenkung der Emissionen gerichtet, wobei der Aufwand oft in keinem Verhältnis zum ökologischen Nutzen stand. In etlichen Anlagen stiegen die Verbrennungskosten dadurch auf weit mehr als 500 DM pro Tonne Hausmüll.

Schon frühzeitig wurden Wege aufgezeigt, durch geeignete Maßnahmen im heißen Teil der Anlagen und durch technologische Vereinfachungen oder Kombination einzelner Verfahrensstufen den Aufwand für die Gasreinigung zu reduzieren [2, 3, 4]. Ohne den erreichten hohen Emissionsstandard aufzugeben, konnten dadurch erhebliche Kosteneinsparungen erzielt werden. Für derzeit in Betrieb gehende Abfallverbrennungsanlagen in Deutschland werden Verbrennungskosten im Bereich von 200-250 DM pro Tonne Hausmüll angegeben. Damit sind noch nicht alle Einsparpotentiale ausgeschöpft und so wird weiterhin in unserem Hause an einer Optimierung der klassischen Abfallverbrennung gearbeitet.

Vielsprechend erscheinen aber auch Ansätze, die Behandlung von Abfällen in anderen oder

in Kombination mit anderen thermischen Prozessen vorzunehmen. Ein neuer Vorschlag aus dem Forschungszentrum Karlsruhe zur Kombination einer Abfallverbrennungsanlage mit einem Kraftwerk, das sogenannte UPSWING-Verfahren (**U**nification of **P**ower plant and **S**olid **W**aste **I**ncineration on the **G**rate), wird im Folgenden näher beschrieben und mit anderen Konzepten verglichen. Im Vordergrund steht dabei die Frage, wo in der Abfallverbrennung als kritisch angesehene Komponenten wie saure Schadgase, thermisch flüchtige Schwermetalle oder polychlorierte Dibenzo-p-dioxine (PCDD) und Dibenzofurane (PCDF) letztendlich verbleiben.

Mitverbrennung in Industrieöfen

Eine erhebliche Kostenreduktion verspricht auf den ersten Blick die zur Zeit intensiv und kontrovers diskutierte Mitverbrennung von Abfällen in anderen thermischen Prozessen wie Kraftwerken, Zementwerken oder Hochöfen. Für diese Prozesse gelten im Allgemeinen weniger strenge Grenzwerte als für die Abfallverbrennung. Zur Vermeidung einer reinen Schadstoffverdünnung in Industrieöfen beim Ersatz von Regelbrennstoff (z.B. Kohle) durch Siedlungsabfall erlaubt die 17. Verordnung zur Durchführung des Bundesimmissionsschutzgesetzes (17. BImSchV), die in Deutschland die Emissionsgrenzwerte aus Abfallverbrennungsanlagen festlegt, nur eine Mitverbrennungsquote von 25% Abfall und enthält in der sogenannten Mischungsregel Vorschriften, wie

die Emissionsgrenzwerte im Einzelfall zu berechnen sind [1]. Auch diese Regelung lässt aber bei Ausschöpfung der Grenzwerte ein gewisses Potential für eine Schadstoffverdünnung zu.

Der Ersatz von Regelbrennstoff wie Öl oder Steinkohle durch Abfallstoffe stellt an deren Qualität bezüglich Brennwert und Schadstoffgehalt Anforderungen, die in jedem Falle eine Vorbehandlung, z.B. eine Sortierung, unerlässlich machen. Neben den Emissionsbegrenzungen ist der Eintrag einzelner im Abfall enthaltener Elemente in Industrieöfen auch im Hinblick auf die Korrosion in heißen Anlagenteilen wie z.B. Abhitzeesseln und auf die Qualität der Produkte von Bedeutung. So muss z.B. im Zement der Gehalt von Chloriden oder einzelnen Schwermetallen, besonders der des Chroms, begrenzt werden. Bei Kessel- und Flugstäuben aus Kraftwerken, die derzeit vollständig in eine Verwertung gehen, werden an die Elutionsbeständigkeit der Schwermetalle hohe Anforderungen gestellt. Ähnliches gilt für den Quecksilbergehalt in den Kraftwerksgipsen aus der Abgasentschwefelung.

Die wesentlichen Vorbehalte gegen die Mitverbrennung von Abfällen in Industrieöfen sind im Folgenden aufgelistet.

- Die Emissionsgrenzwerte des thermischen Hauptprozesses liegen üblicherweise deutlich über denen der Abfallverbrennung, somit findet auch bei Anwendung der Mischungsregel und Ausnutzung der Grenzwerte eine Verdünnung statt.

- Die thermischen Prozesse akzeptieren nur heizwertreiche und gering kontaminierte Abfallfraktionen.
- Eine Mitverbrennung ist nur dann wirtschaftlich, wenn der Einsatz des Abfalls im Kraftwerk dem Betreiber vergütet wird.

Im Sinne einer integrierten Abfallwirtschaft bringt die Mitverbrennung weder ökologische noch ökonomische Vorteile. Im Gegenteil resultiert aus dem Ausschleusen einer „Brennstofffraktion“ eine Heizwertabsenkung und eine Erhöhung der Schadstoffgehalte des verbleibenden Abfalls. Damit wird aber die zur Erreichung der Qualitätsanforderungen für eine Deponierung [5] oder für eine Verwertung [6] der Rostaschen notwendige Inertisierung schwieriger und erfordert unter Umständen die Zufeuerung von Heizöl in der Abfallverbrennungsanlage – ein sicherlich nicht wünschenswerter Effekt.

Kombination der Abfallverbrennung mit anderen thermischen Verfahren

Die verschiedenen Optionen

Einen alternativen Ansatz zur Kostenreduktion der Abfallverbrennung verfolgt die Kopplung einer Abfallverbrennungsanlage mit einem modernen Kraftwerk, bei der Synergieeffekte durch die gemeinsame Nutzung von Aggregaten wie Kessel und/oder Gasreinigung erzielt werden sollen. Da-

zu wurden Strategien mit unterschiedlichem Integrationsgrad entwickelt bzw. vorgeschlagen, die in Abb. 1 schematisch dargestellt sind.

- Die dampfseitige Einbindung erspart die Turbine, die damit verbundenen Hilfsaggregate und die zugehörigen Bauten (Variante I). Der Investitionsbedarf der Abfallverbrennungsanlage kann so bis zu ca. 20% reduziert werden.
- Die Satelliten-Feuerung [7], die den Abfall auf einem separaten Rost verbrennt und die heißen, ungereinigten Abgase direkt in die Brennkammer eines Kohlekraftwerks einleitet (Variante II), verzichtet auf den Kessel und die komplette Gasreinigung.
- Die Einleitung der entstaubten Abgase der Abfallverbrennung in die Entschwefelungsanlage eines Kohlekraftwerks (Variante III) ersetzt die Wäscher in der Abfallverbrennung.
- Das UPSWING-Verfahren [8] verknüpft die Dampfkreisläufe (Variante I) und speist das teilgereinigte Abgas aus der Abfallverbrennung als Förderluft vor den Kohlemühlen oder als Primärluft in den Ofen eines Kohlekraftwerks ein (Variante IV). Dadurch werden in der chemischen Gasreinigung die zweite Waschstufe, der Katalysator und eine eventuelle Feinreinigung eingespart.

Die unterschiedlichen Varianten sollen im Folgenden kurz erläutert werden. Die Mitverbrennung

im Kohlekraftwerk, die Satellitenfeuerung und das UPSWING-Verfahren sollen zudem hinsichtlich des Verbleibs ausgewählter, dem Abfall entstammender Schadstoffe miteinander verglichen werden.

Integration der Dampfkreisläufe

Diese in Abb. 1 als Option I dargestellte einfache Strategie ist anzuraten, wenn die Abfallverbrennungsanlage in enger Nachbarschaft eines Kraftwerks errichtet werden kann. Die Kombination der Dampfkreisläufe kann so gestaltet werden, dass die Dampfparameter im Kessel der Abfallverbrennungsanlage zur Verminderung der Korrosionsgefahr niedrig gehalten werden (Maximaltemperaturen um 250 °C). Eine derartige Verschaltung der Dampfkreisläufe ist kürzlich für eine neu zu errichtende Abfallverbrennungsanlage in Auftrag gegeben worden [9].

Satellitenfeuerung

Dieser Verfahrensvorschlag (Option II in Abb.1) beinhaltet den Bau einer Brennkammer für Abfälle in unmittelbarer Nähe eines Kohlekraftwerks. Deren Abgase sollen ohne jegliche Kühlung und Reinigung in die Brennkammer des Kohlekraftwerks eingeleitet werden. Damit wird die aus dem Abfall freigesetzte Energie direkt dem Kraftwerkskessel zugeführt und die Gasreinigung des Kraftwerks wird für beide Prozesse genutzt. Es ist offensichtlich, dass alle im Abgas enthaltenen Schadstoffe aus dem Abfall in das Kraftwerk gelangen.

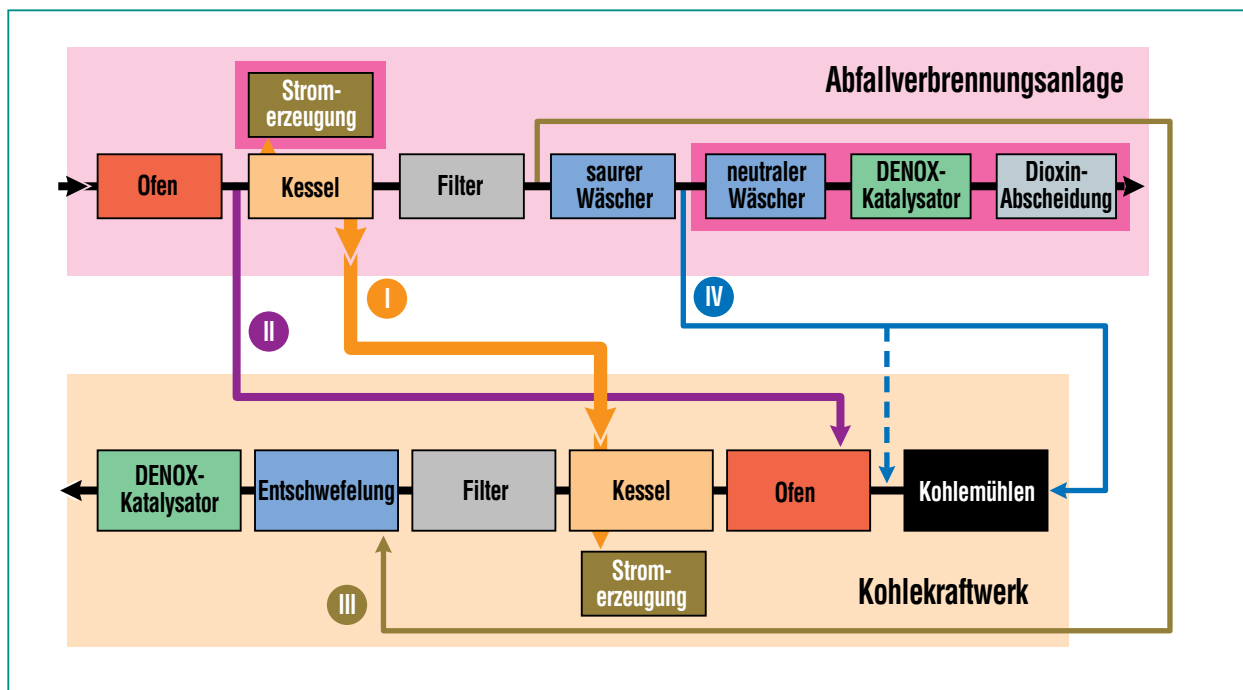


Abb. 1: Verschiedene Optionen der Kombination einer Abfallverbrennungsanlage und eines Kohlekraftwerks (I: Verbindung der Dampfkreisläufe; II: Satellitenfeuerung; III: Reinigung der entstaubten Abgase der Abfallverbrennung im SO₂-Wäscher des Kohlekraftwerks; IV: UPSWING-Verfahren).

Einleitung entstaubter Abgase in die Entschwefelungsanlage des Kraftwerks

Die Option III in Abb. 1, bei der das entstaubte Abgas der Abfallverbrennungsanlage direkt in die Entschwefelungsanlage des Kraftwerks eingespeist wird, spart die chemischen Gasreinigungsstufen in der Abfallverbrennung ein. In diesem Falle ist zu bedenken, dass dem Abfall zuzuschreibende Kontaminationen die Vermarktbarkeit des Kraftwerksgipses gefährden können. Besonders zu beachten sind Quecksilber so wie die PCDD und PCDF. Erhöhte Chlorideinträge müssen durch eine Wäsche aus dem Gips entfernt werden. Diese Variante soll im Folgenden nicht näher betrachtet werden.

Das UPSWING-Verfahren

Das im Forschungszentrum Karlsruhe entwickelte UPSWING-Verfahren verknüpft die Dampfkreisläufe beider Prozesse wie in Option I und trennt die Gasreinigung zwischen der Abfallverbrennungsanlage und dem Kraftwerk auf. Als Kraftwerke kommen Kohlestaub- und Kohlewirbelschichtfeuerungen sowie Schwerölkraftwerke in Betracht. Im Weiteren soll nur die Staubfeuerung betrachtet werden. Die gasseitige Kopplung der beiden Feuerungen erfolgt so, dass sowohl die in modernen Abfallverbrennungsanlagen erreichten Emissionsstandards als auch die Qualität der Reststoffe aus dem Kohlekraftwerk beibehalten werden.

Aus dem Abgas nach dem Abhitzekeessel der Abfallverbrennungsanlage werden alle Schwermetalle außer Quecksilber in einem effizienten Filter bis auf geringe, im Rahmen der Emissionsgrenzwerte der 17. BImSchV liegende Konzentrationen zurückgehalten. Die ebenfalls im Kraftwerk störenden Kontaminanten Quecksilber und Chlorwasserstoff (HCl) werden in einem einfachen sauren Wäscher zu weit mehr als 90% abgeschieden. Die teilgereinigten Gase, die weiterhin Schwefeldioxid (SO₂), Stickstoffoxide (NO_x) und gasförmige PCDD/F enthalten, werden entweder als Förderluft in die Kohlemühlen eingeleitet oder aber, was technologisch einfacher zu realisieren sein dürfte, der Primärluft der Kohlebrenner zugemischt. Da eine Rauchgasrückführung in der Kohleverbrennung

häufig praktiziert wird, ist die Verwendung einer Primärluft mit verringertem Sauerstoffanteil nicht prinzipiell neu.

Die aus dem Abfall stammenden kritischen Komponenten Schwermetalle und HCl werden wie in herkömmlichen Abfallverbrennungsanlagen ausgeschleust und in kleinen Reststoffströmen konzentriert. Im Brennraum des Kraftwerks werden die im Abgas verbliebenen gasförmigen PCDD/F thermisch zerstört und das NO_x wird in der Reburn-Zone weitgehend abgebaut. Das SO₂ aus der Abfallverbrennung wird gemeinsam mit dem aus der Kohle stammenden in der Entschwefelungsanlage des Kraftwerks abgeschieden.

Das UPSWING-Verfahren zeichnet sich dadurch aus, dass es

- die hohen Emissionsstandards einer modernen Abfallverbrennungsanlage beibehält,
- den Verbleib der einzelnen Kontaminanten nachvollziehbar macht,

- durch die Vermeidung des Eintrags von Schwermetallen in das Kraftwerk dessen Reststoffe in ihrer Qualität nicht beeinflusst und

- durch die Einsparung einiger Prozessstufen (in der Abb. 1 rot unterlegt) eine Reduktion der Investitionskosten um bis zu 50% erwarten lässt.

Vergleich der Umweltverträglichkeit

Verhalten einzelner Elemente in der Abfall- und Kohleverbrennung

Siedlungsabfälle und Steinkohle unterscheiden sich als Brennstoffe in wesentlichen Punkten:

- der Heizwert der Kohle ist etwa drei mal so hoch wie der von Siedlungsabfall,
- der Siedlungsabfall wiederum enthält nahezu durchgängig höhere Konzentrationen an umweltrelevanten Elementen.

Bei den in Tabelle 1 zusammengefassten Konzentrationen ausgewählter Elemente zeigt die Kohle nur im Falle des Schwefels und des Arsens höhere Niveaus als der Siedlungsabfall.

Zur Berechnung der Inventare einzelner Elemente in den Kompartimenten Kesselasche, Flugasche und entstaubtes Abgas im Kohlekraftwerk bei den drei Szenarien Mitverbrennung, Satellitenfeuerung und UPSWING-Verfahren werden neben den Inventaren die spezifischen Abgasströme pro Tonne Brennstoff, die prozentuale Verteilung der Massenströme und die Transferkoeffizienten benötigt, die den Übergang der Elemente in einzelnen Massenströme hinein jeweils für die Abfallverbrennung und für die Kohlestaubfeuerung beschreiben.

Dabei ist zu beachten, dass die Temperaturniveaus in der Abfall- und der Kohleverbrennung sich erheblich unterscheiden. Während bei der Abfallverbrennung im Gutbett Maximaltemperaturen zwischen ca. 800 und knapp 1000 °C vorliegen, werden in der Kohlestaub-Trockenfeuerung 1000 bis 1200 °C und in der Schmelzkammerfeuerung sogar über 1500 °C erreicht. Die Verbrennungstemperatur hat einen wesentlichen Einfluss auf die Verflüchtigung der Elemente. Die im Folgenden verwendeten Daten sind der Literatur entnommen.

Verbleib thermisch flüchtiger Elemente

Der Verbleib einiger bei der Abfallverbrennung kritischer flüchtiger Elemente in den Reststoff-

	Siedlungsabfall		Steinkohle	
	Mittelwert	Bereich	Mittelwert	Bereich
S	4000	1000 - 6000	7000	4000 - 15000
Cl	7000	3000 - 9000	1000	100 - 3000
As	7	2 - 20	20	1 - 60
Cd	10	3 - 20	1	<0,1 - 2,5
Hg	3	0,5 - 10	0,12	0,1 - 0,6
Pb	700	400 - 1500	20	10 - 60

Tab. 1: Mittlere Konzentrationen und Konzentrationsbereiche ausgewählter Elemente in Siedlungsabfall und Steinkohle in mg/kg [10-14].

strömen des Kraftwerks soll exemplarisch für die drei Konzepte Mitverbrennung, Satellitenfeuerung und UPSWING-Verfahren abgeschätzt werden. Bei der Mitverbrennung wird die Menge des eingesetzten Abfalls auf die in Deutschland zugelassene Höchstmarke von 25% begrenzt. In den beiden anderen Szenarien wird das gleiche Massenverhältnis von Kohle und Abfall zugrunde gelegt. Um den Energieeintrag in den Kessel des Kraftwerks konstant zu halten, muss der Durchsatz im Kohlekraftwerk um einen Anteil erniedrigt werden, der dem aus dem Abfall stammenden Energieeintrag entspricht. Der über das Abgas in die Kohleverbrennung eingetragene Anteil der einzelnen Elemente wird jeweils einschließlich seiner Verteilung auf die Kompartimente Kesselasche, Flugasche und Abgas nach der Entstaubung im Kraftwerk berechnet.

Es sei darauf hingewiesen, dass die Inventarberechnungen zwar Hinweise auf den Eintrag eines Elements in einen Reststoff des Kohlekraftwerks geben, die Auswirkungen auf die Umweltverträglichkeit des betreffenden Materials aber ohne Elutionstest und das heißt ohne Proben aus real existierenden Anlagen nicht quantifiziert werden können.

Chlor

Chlor ist in der Abfall- wie in der Kohleverbrennung ein hochflüchtiges Element, das bevorzugt als HCl in das Abgas übertritt. Siedlungsabfall enthält im Mittel eine sieben mal höhere Konzentration an Chlor als die Steinkohle.

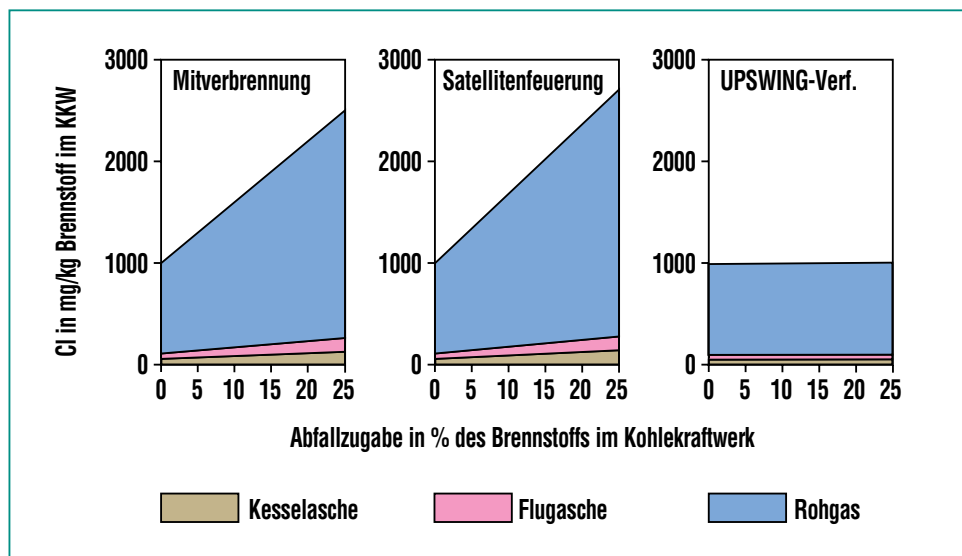


Abb. 2: Chlorinventar (CI) im Kohlekraftwerk (KKW) und seine Verteilung auf Kessel- und Flugasche sowie Rohgas nach Filter bei den verschiedenen Konzepten (maximale Abfallzugabe 25 % des Durchsatzes). Chlor liegt vor allem als HCl im Abgas vor.

In den drei Grafiken in Abb. 2 sind das Chlorinventar und seine Verteilung auf Kesselasche, Flugasche und entstaubtes Abgas im Kohlekraftwerk im Falle einer Mitverbrennung, der Satellitenfeuerung und des UPSWING-Verfahrens dargestellt. Die Mitverbrennung wie auch die Satellitenfeuerung erhöhen den Chloreintrag in das Kohlekraftwerk erheblich. Eine Mitverbrennung von 25% Abfall oder der Betrieb einer Satellitenfeuerung mit dem gleichen Massenanteil an Abfall führen zu einem Anstieg des Chlorinventars um ca. 50%. Der größte Anteil findet sich als HCl in der Gasphase und lässt die HCl-Konzentration im Abgas des Kraftwerks von ca. 100 auf ca. 250 mg/m³ ansteigen. Ein Emissionsproblem ist dadurch nicht zu erwarten, da HCl nahezu quantitativ im SO₂-Wäscher entfernt wird, und zu hohe Konzentrationen an Chlorid im Gips können durch eine Wäsche

reduziert werden. Auf Anzeichen verstärkter Kesselkorrosion ist zu achten.

Eine deutliche Zunahme des Chlorinventars ist auch in den Kessel- und Flugaschen zu erkennen. Eventuelle Überschreitungen von Qualitätsstandards bei einer Verwertung dieser Materialien lassen sich ebenfalls durch eine Wäsche umgehen. In jedem Falle erfordern diese Wäschen aber einen zusätzlichen Aufwand und damit erhöhte Kosten.

Die einfache saure Wäsche des UPSWING-Verfahrens entfernt das HCl aus dem Abgas der Abfallverbrennungsanlage derart effizient, dass die in dieser Variante in das Kraftwerk eingetragene Chlormenge nur marginal ist. Beeinträchtigungen irgendwelcher Qualitätsstandards sind nicht wahrscheinlich.

Quecksilber

Das hochtoxische Schwermetall Quecksilber hat die höchste thermische Flüchtigkeit aller Metalle und ist im Abfall gegenüber der Steinkohle um den Faktor 20-30 angereichert. Abb. 3 verdeutlicht sowohl im Falle der Mitverbrennung als auch im Falle der Satellitenfeuerung bei einer Abfallzugabe von 25% einen Anstieg des Quecksilberinventars im Kohlekraftwerk um einen Faktor von etwa 8. Wie bei Chlor ist auch hier die Hauptmenge in der Gasphase zu finden. Dadurch werden die im entstaubten Abgas der Kohleverbrennung typischen Quecksilberkonzentrationen von $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis auf Werte um $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erhöht. Dieses Quecksilber liegt wegen der hohen SO_2 -Konzentrationen überwiegend metallisch vor und lässt sich daher nur unter großem Aufwand – z.B. unter Einsatz von Kohleabsorbentien – abscheiden. Ob und in wie weit eine Kontami-

nation des Kraftwerksgipses und der Flugaschen deren Verwertung beeinträchtigen ist in jedem Fall sorgfältig zu prüfen.

Wie bereits für Chlor gefunden, ist auch im Falle des Quecksilbers der Eintrag in die Stoffströme des Kraftwerks beim UPSWING-Verfahren am geringsten. Die bei einem Abfallanteil von 25% zu erwartende 15-prozentige Inventarerhöhung dürfte weder in der Emission noch in den einzelnen festen Reststoffen irgendwelche Probleme aufwerfen.

Cadmium

Ein weiteres Problemelement der Abfallverbrennung ist das toxische und thermisch mobile Cadmium, dessen Einträge aus der Abfallverbrennung in das Kohlekraftwerk jeweils denen des Quecksilbers ähneln. Die Mitverbrennung und die Satellitenfeuerung führen zu einer Verdreifa-

chung des Cadmiuminventars im Kraftwerk bei 25% Abfallzugabe. Cadmium ist vor allem in den Kraftwerksflugaschen zu finden, in geringerem Maße werden aber auch die Konzentrationen in den Kesselaschen erhöht. In jedem Falle ist die Qualität dieser Reststoffe zu überprüfen, um deren Zertifizierung für die Verwertung sicher zu stellen.

Da Cadmium und seine Verbindungen nur bei Temperaturen oberhalb 600°C in der Gasphase vorliegen können, also im Temperaturbereich der Staubabscheidung (um 200°C) vollständig an den Flugstaub gebunden sind, ist bei einer effizienten Entstaubung, wie sie das UPSWING-Verfahren vorsieht, nur ein vernachlässigbarer Cadmiumeintrag über das Abgas der Abfallverbrennung in das Kraftwerk zu erwarten.

Blei

Der Unterschied der Bleikonzentration im Abfall und in der Kohle ist mit einem Faktor von 20-70 erheblich. Wegen der im Verhältnis zum Cadmium geringeren Flüchtigkeit des Bleis und seiner Verbindungen ist ein signifikanter Unterschied des Verhaltens bei den drei betrachteten Verfahren zu erwarten. Bei der Mitverbrennung wird durch den gesamten Eintrag des im Abfall enthaltenen Bleis dessen Inventar im Kraftwerk etwa um den Faktor zehn erhöht, wie Abb. 4 ausweist. Blei ist praktisch vollständig in den festen Reststoffen zu finden.

Bei der Satellitenfeuerung verbleiben knapp 70% des Bleis in der Rostasche der Abfallverbrennung. Die in das Abgas überge-

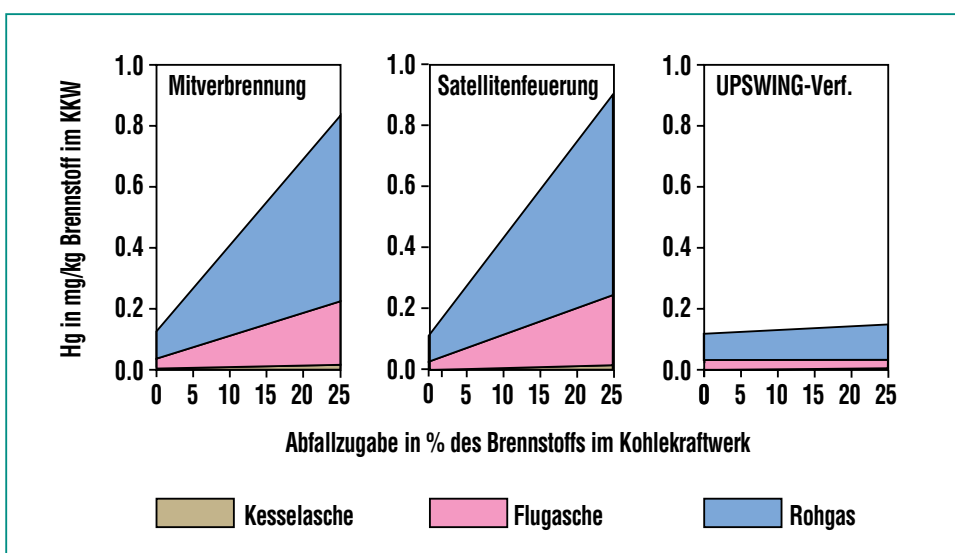


Abb. 3: Quecksilberinventar (Hg) im Kohlekraftwerk (KKW) und seine Verteilung auf Kessel- und Flugasche sowie Rohgas bei den verschiedenen Konzepten (maximale Abfallzugabe 25 % des Durchsatzes). Quecksilber ist bevorzugt gasförmig im Abgas zu finden.

treten und damit in das Kraftwerk gelangende Menge erhöht das Inventar dort immer noch um den Faktor 4. Erst im Falle des UPSWING-Verfahrens, bei dem die Flugstäube und also auch nahezu das gesamte Blei in einem Filter abgeschieden werden, wird der Bleigehalt im Kraftwerk nur noch unwesentlich verändert.

Weitere Elemente

In der Abb. 5 sind für die in Tabelle 1 aufgeführten Elemente die Inventare im Kraftwerk zusammengestellt, die sich bei einer Mitbehandlung von 25% Abfall in den drei besprochenen Verfahrensvarianten einstellen. Für die oben nicht im Detail abgehandelten Elemente lassen sich daraus folgende Schlüsse ziehen:

- Schwefel und Arsen kommen in der Kohle üblicherweise in höheren Konzentrationen als im Abfall vor. Folglich muss bei der Mitverbrennung das Inventar im Kraftwerk sinken. Die beiden anderen Verfahren tragen den aus dem Abfall verflüchtigten Anteil in das Kraftwerk ein und führen somit zu einer geringen Erhöhung mit leichten Vorteilen auf Seiten des UPSWING-Verfahrens.
- Nickel ist ein Metall, das bei der Abfallverbrennung nahezu vollständig in der Rostasche verbleibt. Eine merkliche Erhöhung des Inventars ist im Kraftwerk nur bei der Mitverbrennung zu erwarten.
- Zink ist in seinem thermischen Verhalten dem Blei sehr ähnlich. Da hier der Konzentrationsunterschied zwischen Ab-

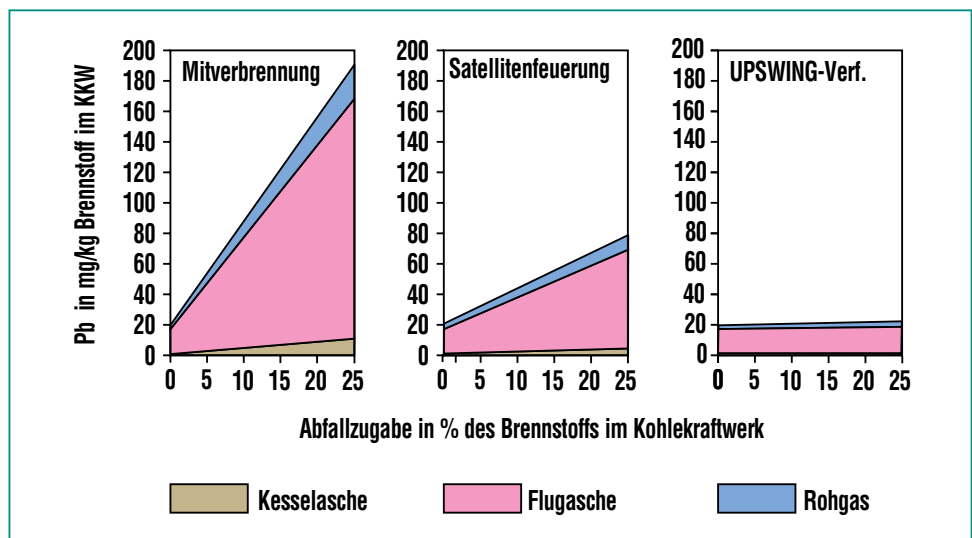


Abb. 4: Bleiinventar (Pb) im Kohlekraftwerk (KKW) und seine Verteilung auf Kessel- und Flugasche sowie Rohgas bei den verschiedenen Konzepten (maximale Abfallzugabe 25 % des Durchsatzes). Die Hauptmenge an Blei wird in die Flugasche transferiert.

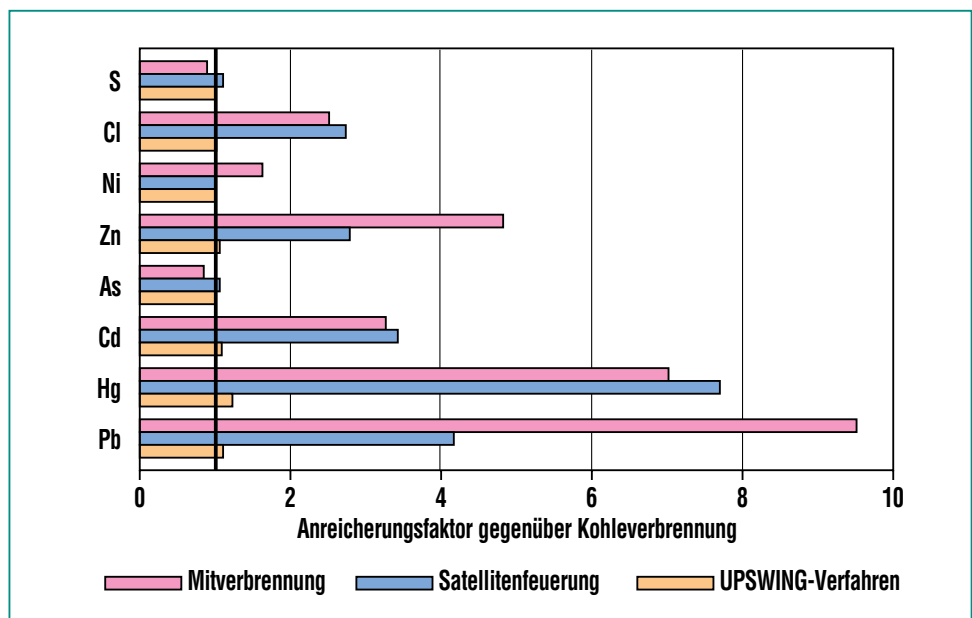


Abb. 5: Anreicherung ausgewählter Elemente im Kohlekraftwerk bei der Mitverbrennung, der Satellitenfeuerung und dem UPSWING-Verfahren (gerechnet für einen Abfallanteil am Gesamtbrennstoff von jeweils 25 %).

fall und Steinkohle geringer ist, fallen auch die bei der Mitverbrennung und der Satellitenfeuerung zu erwartenden Inventarerhöhungen im Kraft-

werk moderater als beim Blei aus. Beim UPSWING-Verfahren ist nur ein vernachlässigbarer Eintrag in das Kraftwerk zu erwarten.

Zur Rolle der PCDD/F

Nach wie vor steht das Auftreten von PCDD/F bei thermischen Verfahren im Mittelpunkt des Interesses. In der Abfallverbrennung stellt die de-novo-Synthese im Bereich des Abhitzekessels den wesentlichen Bildungsweg für diese Verbindungen dar [15]. In modernen Abfallverbrennungsanlagen liegen die typischen Konzentrationen im Abgas hinter dem Abhitzekessel bei 0.1-1 ng/m³. Während die PCDD/F in alten Anlagen mit weniger gutem Ausbrand hauptsächlich im Flugstaub – und dort an Kohlenstoffpartikel gebunden – zu finden waren, liegen sie in heutigen Anlagen wegen der geringen Kohlenstoffgehalte in den Flugstäuben zum großen Teil in der Gasphase vor.

Folglich ist im UPSWING-Verfahren damit zu rechnen, dass ein erheblicher Anteil der PCDD/F-Fracht im Abgas der Abfallverbrennung in das Kohlekraftwerk übergeführt wird. Frühere Untersuchungen in einer Abfallverbrennungsanlage lassen erwarten, dass die in den Brennraum des Kraftwerks eingetragenen PCDD/F praktisch völlig zerstört werden [16]. Dieser Tatbestand muss aber noch in speziellen Versuchen überprüft werden.

Bei der Kohleverbrennung spielt die de-novo-Synthese keine Rolle und PCDD/F werden im Abgas nur in äußerst geringen Mengen gefunden. In wie weit dieses aber noch gilt, wenn das Chlorinventar wie bei der Mitverbrennung oder der Satellitenfeuerung kräftig erhöht wird, ist theoretisch nicht zu

beantworten. Entsprechende Experimente hierzu sind unerlässlich.

Stickoxide

In modernen großtechnischen Abfallverbrennungsanlagen werden im Abgas Stickoxidkonzentrationen im Bereich 300-500 mg/m³ gemessen. Sowohl bei der Satellitenfeuerung als auch im UPSWING-Verfahren gelangen diese Stickoxide in die Brennkammer des Kohlekraftwerks, wo sie in erheblichem Maße in der Reburn-Zone wieder zu Stickstoff reduziert werden können. Im Kohlekraftwerk treten auf Grund der hohen Verbrennungstemperaturen durch Oxidation des Luftstickstoffs NO_x-Konzentrationen von deutlich über 1000 mg/m³ auf. Das aus der Abfallverbrennung stammende NO_x könnte also vernachlässigt werden, zumal inzwischen sowohl für Abfallverbrennungsanlagen als auch für Großkraftwerke ein identischer Stickoxid-Emissionsgrenzwert von 200 mg/m³ (anzugeben als NO₂) gilt und der üblicherweise im Kraftwerk vorhandene DENOX-Katalysator den geringen Mehreintrag aus der Abfallverbrennung sicher mit abbauen sollte. Es ist also gewährleistet, dass Stickoxide aus der Verbrennung des Abfalls in keinem Falle zu einer Emissionserhöhung im Kraftwerk führen.

Zusammenfassung und Ausblick

Zur Minimierung der Kosten der thermischen Abfallbehandlung sind mehrere Verfahren vorgeschlagen worden, die diesen Pro-

zess mit anderen thermischen Verfahren kombinieren. Im Kontext dieses Berichtes wurden miteinander verglichen:

- die Mitverbrennung in einem Kohlekraftwerk,
- die Satellitenfeuerung, bei der heißes, ungereinigtes Abgas aus der Abfallverbrennung in den Brennraum eines Kohlekraftwerks eingebracht wird und
- das UPSWING-Verfahren, bei dem teilgereinigtes Abgas aus der Abfallverbrennung als Trägergas in den Kohlemühlen oder als Primärluft in der Kohlestaubfeuerung genutzt wird.

Bei allen thermisch mobilisierbaren Elementen, deren Konzentration üblicherweise in Siedlungsabfällen erheblich höher ist als in Steinkohle, sind bei der Mitverbrennung und auch bei der Satellitenfeuerung erhebliche Erhöhungen der Inventare in den Stoffströmen des Kohlekraftwerks zu erwarten. Dabei muss im Falle des Chlors und des Quecksilbers dafür Sorge getragen werden, dass keine Emissionsprobleme auftreten. Falls im SO₂-Wäscher Gips produziert werden soll, ist dessen Qualität auf entsprechende Kontaminationen zu überprüfen.

Die Konzentrationen der Schwermetalle Zink, Cadmium und Blei erhöhen sich im Falle der Mitverbrennung und der Satellitenfeuerung zum Teil erheblich. Auch hier ist sicher zu stellen, dass dadurch die Verwertbarkeit der Kessel-

und Flugaschen des Kraftwerks nicht gefährdet ist.

Das UPSWING-Verfahren garantiert durch die Entstaubung und die Entfernung von Quecksilber und Chlorwasserstoff einen vernachlässigbaren Eintrag aller flüchtigen Elemente mit Ausnahme des Schwefels in das Kraftwerk. Das aus dem Schwefel in der Abfallverbrennung entstehende SO₂ passiert den Brennraum des Kraftwerks und wird mit dem SO₂ aus der Kohle gemeinsam im SO₂-Wäscher abgeschieden.

Organische Verbindungen wie PCDD/F im Abgas der Abfallverbrennung sollten bei den hohen Temperaturen der Kohleverbrennung vollständig zerstört werden. Der Nachweis einer solchen Zerstörung und die Klärung der Frage, ob bei der Mitverbrennung und bei der Satellitenfeuerung die

PCDD/F-Bildung vermieden werden kann, erfordern allerdings experimentelle Untersuchungen.

Die der Abfallverbrennung zuzuordnenden Stickoxide lassen sich in jedem der verglichenen Verfahren leicht auf die heute für die Abfallverbrennung gültigen Grenzwerte reduzieren.

Die Ökonomie der verglichenen Verfahren ist deutlich besser als die der klassischen Abfallverbrennung. Die vorgelegten Abschätzungen attestieren dem UPSWING-Verfahren aus dem Blickwinkel der Umweltauswirkungen heraus eine deutliche Überlegenheit gegenüber der Mitverbrennung und auch der Satellitenfeuerung. Der ökologische Vorteil sollte die Mehraufwendungen im Vergleich zu den beiden anderen Optionen mehr als wettmachen.

Literatur

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (1990), 17. Verordnung zur Durchführung des Bundesimmissionsschutzgesetzes (Verordnung über Verbrennungsanlagen für Abfälle und ähnliche brennbare Stoffe – 17. BImSchV), Bundesgesetzblatt, Teil 1, 2 545, corr. 2 832
- [2] H. Vogg, H. Hunsinger, A. Merz, L. Stieglitz, J. Vehlows, (1991), VDI Berichte 895, 193
- [3] H. Vogg, J. Vehlows, (1993), *Interdisciplinary Science Reviews*, 18, 199
- [4] J. Vehlows, (1996), *UTA Technology and Environment*, 2/96, 144
- [5] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (1993), Dritte Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Abfallgesetz (TA Siedlungsabfall), Technische Anleitung zur Verwertung, Behandlung und sonstigen Entsorgung von Siedlungsabfällen vom 14. Mai 1993, Bundesanzeiger Jahrgang 45, Nr. 99a

-
-
- [6] LAGA (1994) Merkblatt
*Entsorgung von Abfällen aus
Verbrennungsanlagen für
Siedlungsabfälle, verabschiedet
durch die Länderarbeits-
gemeinschaft Abfall (LAGA)
am 1. März 1994*
- [7] H. Hölter,
(1997), DE 196 17 034 C1
(13.11.97)
- [8] H. Hunsinger, S. Kreis, H. Seifert, J. Vehlow,
(1998), DE-OS 19 723 145
(10.12.1998)
- [9] Martin GmbH (2000),
[http://www.martingmbh.de/
englisch /e_index.htm](http://www.martingmbh.de/englisch/e_index.htm)
- [10] International Ash Working
Group (IAWG):
A.J. Chandler, T.T. Eighmy,
J. Hartlén, O. Hjelm, O.
Hjelmar, D.S. Kosson, S.E. Sawell,
H.A. van der Sloot, J. Vehlow,
(1997) *Municipal Solid Waste
Incinerator Residues*.
Amsterdam: Elsevier
- [11] H. Maier, P. Dahl, H. Gutberlet,
A. Dieckmann,
(1992), VGB Kraftwerkstechnik,
72, 439
- [12] Th. Gerhardt, M. Rebmann,
H. Spliethoff, K.R.G. Hein,
(1996), VGB Kraftwerkstechnik,
76, 403
- [13] C. Martel, O. Rentz,
(1997), VGB Kraftwerkstechnik,
78, 72
- [14] O. Rentz, H. Sasse, U. Karl,
H.-J. Schlee, R. Dorn,
(1998), *Forschungsbericht 204
02 360, UBA-FB 98-001/2,
Umweltbundesamt Berlin*
- [15] H. Vogg, L. Stieglitz,
(1986), *Chemosphere*, 15, 1373
- [16] J. Vehlow, H. Braun,
K. Horch, A. Merz, J. Schneider,
L. Stieglitz, H. Vogg,
(1990), *Waste Management &
Research*, 8, 461

Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Strukturbildung auf Vormischflammen

A. G. Class, D. B. Kuhn, IKET

Einführung

Der Verbrennungsvorgang in typischen technischen Anwendungen, wie z.B. der motorischen Verbrennung oder der Feuerung in Heizungsanlagen, stellt einen hochgradig komplexen chemisch-physikalischen Prozess dar. Dieser beinhaltet unter anderem die Reaktionskinetik zwischen vielen beteiligten Spezies, die Wechselwirkung von Strömung und Chemie, Turbulenz, Flammlöschung, Wärmestrahlung und vieles mehr. Das Ziel der hier dargestellten Arbeiten am Institut für Kern- und Energietechnik ist es, neue mathematische Methoden zu entwickeln, mit denen das dynamische Verhalten von Flammen auf der Mikroskala beschrieben werden kann. Diese Eigendynamik bereitet der statistischen Beschreibung von Flammen durch zeitlich und räumlich gemittelte Größen besondere Probleme.

Der Beitrag beschäftigt sich mit einer speziellen Fragestellung im Übergangsbereich von laminarer zu turbulenter Verbrennung. In diesem Übergangsbereich wird aus einer glatten, zeitunabhängigen Flamme eine in zunehmendem Maße zerklüftete, zeitlich veränderliche Struktur. Die Fragestellung ist grundlegender Natur und die gewonnenen Erkenntnisse sind auch auf andere Problemstellungen der Stabilitätstheorie übertragbar.

Im zweiten Abschnitt dieses Beitrages werden die zum Verständnis notwendigen Grundlagen der Flammentheorie am Beispiel einer Kerzenflamme herausgear-

beitet. Im dritten Abschnitt wird in die zelluläre Verbrennung eingeführt und die Anknüpfung der Theorie zur Anwendung aufgezeigt. Im vierten Abschnitt wird eine zur Untersuchung derartiger Probleme geeignete Messtechnik dargestellt. Dieses Messverfahren, die Laserinduzierte Fluoreszenz, dient zur berührungsfreien Messung in zeitlich veränderlichen Flammen. Im fünften Abschnitt wird die mathematische Methode, mit der das Problem behandelt werden kann, in ihren Grundzügen erläutert. Schließlich werden auf dem Computer durch numerische Simulation berechnete Lösungen dargestellt. Diese sollen die Vielfalt und Ästhetik der auftretenden Lösungen illustrieren aber auch die sich dahinter verbergenden physikalischen Phänomene veranschaulichen. Daneben werden zum Vergleich Fotografien derartiger Flammen präsentiert.

Grundlagen

Ausgangspunkt der Betrachtungen ist eine Kerzenflamme wie sie in Abb. 1 dargestellt ist. Die Kerzenflamme besitzt eine scharf nach außen abgegrenzte Leuchtzone. Im Inneren dieser Leuchtzone ist ein schwach bläulich leuchtender Kegel zu erkennen, der den Docht umgibt. Das zunächst feste Wachs der Kerze wird durch die Wärmestrahlung der Flamme aufgeschmolzen und dann im Docht durch Kapillarkräfte hochgezogen. Im unteren Bereich der Flamme strömt Luft auf den Docht zu und vermischt sich mit dem am Docht verdampfenden Wachs. Die Mischung ist an

dieser Stelle sehr fett, d.h. es ist nicht hinreichend Luft verfügbar, um das gesamte Wachs zu verbrennen. Die im Gemisch vorhandene Luft wird in der bläulichen Kegelflamme mit einer entsprechenden Menge Wachs verbrannt. Da Brennstoff und Sauerstoff schon vor der Reaktion vermischt sind, wird von einer Vormischflamme gesprochen. Oberhalb der Vormischflamme liegen eine Vielzahl unverbrannte Kohlenwasserstoffverbindungen vor, die Rußpartikel bilden. Diese tragen, bedingt durch die von ihnen emittierte Wärmestrahlung zum charakteristischen gelben Leuchten der Flamme bei. Im Bereich der Leuchtzone finden keine we-

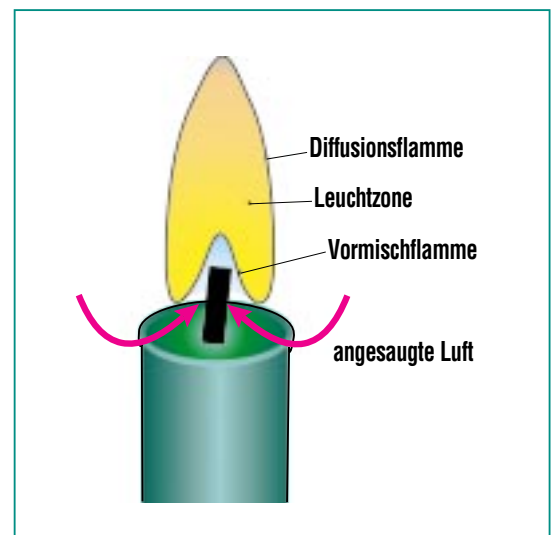


Abb. 1: Schematische Abbildung einer Kerzenflamme. Diese Flamme beinhaltet die beiden grundlegenden Verbrennungstypen: Vormisch- und Diffusionsflamme. Im Bereich der Vormischflamme wird das verdampfte Wachs mit der Luft vermischt und anschließend verbrannt, in der Diffusionsflamme reagiert das noch unverbrannte Wachs mit dem Sauerstoff der Umgebung. Dazwischen befindet sich die Leuchtzone, die durch das Glühen von Rußpartikeln entsteht.

sentlichen chemischen Reaktionen statt. Erst am äußeren Rand der Leuchtzone treffen heiße, unverbrannte Kohlenwasserstoffe auf Luftsauerstoff, so dass diese chemisch umgesetzt werden. Der Sauerstoff gelangt dabei durch Diffusion entgegen der Strömungsrichtung zur Flamme. Es wird von einer Diffusionsflamme gesprochen. An dieser Stelle ist anzumerken, dass die Reaktionszonen der Vormisch- und der Diffusionsflamme jeweils nur einige hundertstel Millimeter dick sind, so dass die Reaktionszonen als sehr dünne Oberflächen aufgefasst werden können.

Bei großen Kerzenflammen, sie entstehen, wenn der Docht zu lang ist, sehen wir eine unruhig brennende Flamme, deren Form sich zeitlich ändert und die auch Strukturen mit kleinen Abmessungen aufweist. Man spricht von turbulenter Verbrennung (im Gegensatz zu stationärer, gleichmäßiger, laminarer Verbrennung). In technischen Brennräumen (Motoren, Kraftwerken, Heizungen) sind große Durchsätze gefordert, die mit starker Turbulenz einhergehen.

Die Kerzenflamme zeigt also die grundsätzlichen Strömungsformen, laminar und turbulent, sowie zwei grundsätzlich verschiedene Verbrennungstypen, die Vormisch- und die Diffusionsflamme. Letztere ist mischungskontrolliert (d. h. die Mischung von Brennstoff mit Luft ist für die Flammenausbreitung bestimmend). Diffusionsflammen werden deshalb immer eingesetzt, wenn explosive Bedingungen vermieden werden sollen, wie

z.B. in fossil gefeuerten Kraftwerken.

In vielen technischen Anwendungen reicht der einfache Grundsatz GEMISCHT + WÄRME = VERBRANNT aus, um Diffusionsflammen befriedigend zu modellieren. Anders verhält es sich bei Vormischflammen, deren bedeutendste Anwendung im Ottomotor zu finden ist. Es liegt überall im Brennraum ein brennbares Gemisch vor und die lokalen Verhältnisse um die Flamme bestimm-

men das Ausbreitungsverhalten. In Abb. 2 ist ein Querschnitt durch eine Vormischflamme schematisch dargestellt. Hinter der Flamme im Rauchgasgebiet ist die Temperatur hoch und der zur Verfügung stehende Brennstoff bei magerer Verbrennung bzw. der zur Verfügung stehende Sauerstoff bei fetter Verbrennung ist umgesetzt. An das Rauchgasgebiet schließt sich stromauf die Reaktionszone an. Hier ist die Temperatur weiterhin hoch und gleichzeitig liegt sowohl Brenn-

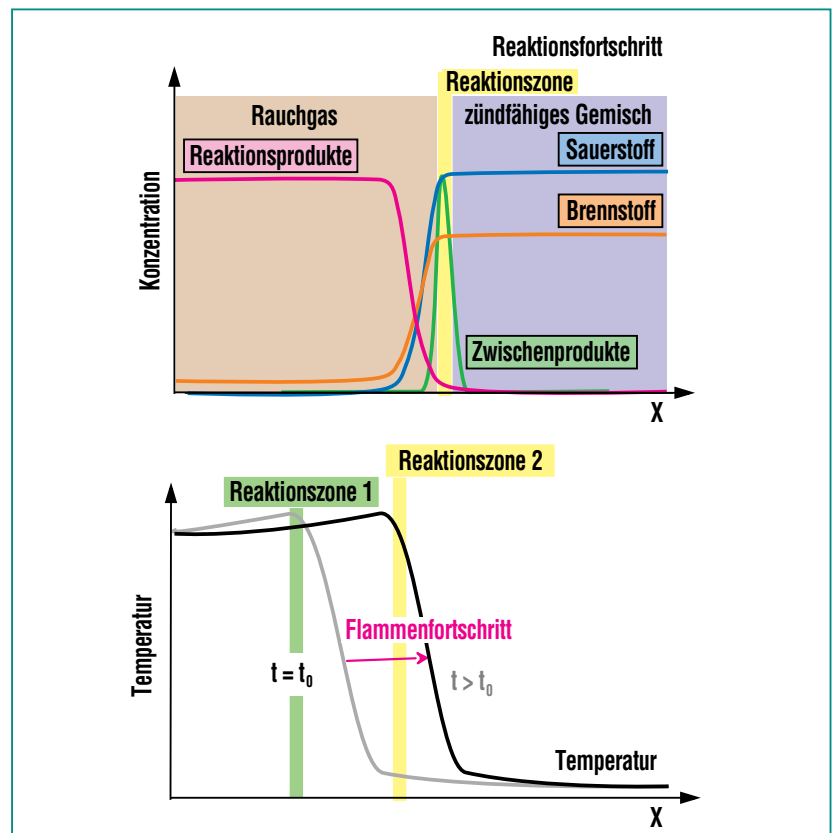


Abb. 2: Querschnitt durch eine Vormischflamme mit Brennstoffüberschuss (fett).

Oben: Die Flamme schreitet von links nach rechts voran. Dementsprechend liegt hinter der Flamme (links) verbranntes Rauchgas, und vor der Flamme (rechts) unverbranntes zündfähiges Gemisch vor. Dargestellt sind Konzentrationsverteilungen.

Unten: Der Temperaturverlauf zu zwei Zeitpunkten veranschaulicht das Fortschreiten der Reaktionszone in x -Richtung.

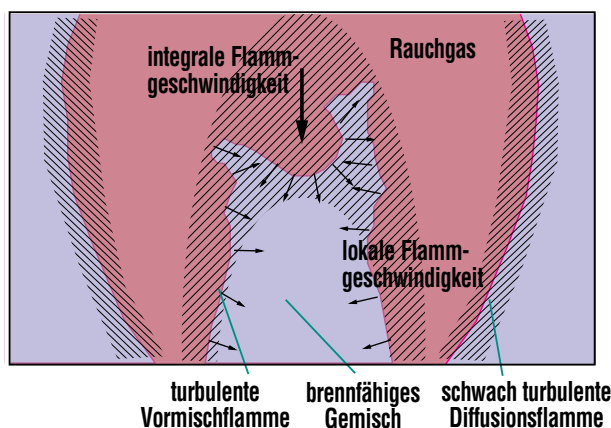
stoff als auch Sauerstoff vor, so dass der chemische Umsatz rasch erfolgt. Weiter stromauf liegt die Vorheizzone. Hier wird das Gemisch bis auf Zündtemperatur durch Wärmeleitung erhitzt und der Sauerstoff- sowie der Brennstoffgehalt nehmen in einer Diffusionsschicht ab. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Flamme stellt sich so ein, dass die durch Reaktion freigesetzte Wärme gerade ausreicht das zuströmende kalte Gas auf Zündtemperatur zu erhitzen. Ist die Flamme heißer, läuft die Reaktion schneller ab und entsprechend ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit auch höher.

An diesen lokalen Betrachtungen ändert sich auch bei turbulenter Verbrennung, d.h. wenn ein stark instationäres und räumlich variables Geschwindigkeitsfeld vorliegt, wenig. Abb. 3 zeigt dies

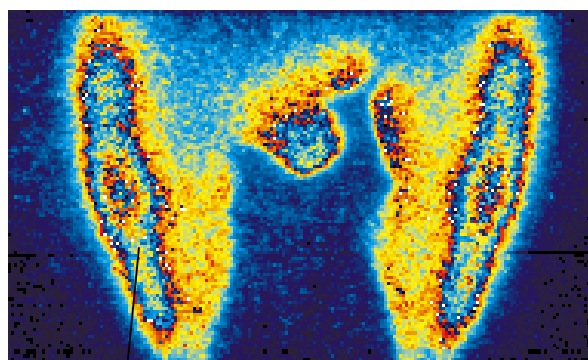
schematisch an einem Ausschnitt aus einer turbulenten Bunsenbrennerflamme. Die Vormischflamme im inneren Kegel breitet sich lokal mit der laminaren Flammgeschwindigkeit in ihre lokale Normalenrichtung aus (kleine Pfeile). Jedoch ist die Flammenfläche durch das Strömungsfeld stark zerklüftet und somit vergrößert. Der Umsatz pro Volumen erhöht sich mit der im Volumen enthaltenen Flammenfläche und kann im turbulenten Fall ein Vielfaches des Umsatzes bei laminarer Verbrennung betragen.

Soll nun versucht werden turbulente Flammen zu beschreiben, so muss eine Aussage erfolgen, wie stark die Flammenoberfläche mit steigender Turbulenz zunimmt. Dieser Ansatz funktioniert so lange, wie die Form der Flamme durch das turbulente Strömungsfeld aufgeprägt wird.

Schwieriger wird die Beschreibung, wenn die Flamme ein Eigenleben entwickelt, d.h. wenn sie eine räumlich/zeitliche Struktur entwickelt, ohne dass diese ursächlich auf das turbulente Strömungsfeld zurückzuführen ist. Diese Eigendynamik tritt auf, wenn Wärme entlang der Flamme transportiert wird, so dass sich ein Bereich der Flamme auf Kosten eines anderen Bereiches erhitzt. In den kalten Bereichen entstehen kalte Strahlen und es tritt unvollständige Verbrennung und unter anderem Kohlenmonoxid auf, während in den heißen Bereichen so hohe Temperaturen entstehen, dass zusätzliches „thermisches“ Stickoxid gebildet wird. Beides ist unerwünscht. Ursache dieses Transports von Wärme entlang der Flamme ist ein Wettbewerb von Stoff- und Wärmetransport, man spricht von thermisch/diffusiven Instabilitä-



Bunsenbrennerflamme



OH-Fluoreszenz

laseroptische Aufnahme (stark vergrößert)

Abb. 3: Beispiel einer turbulenten Bunsenbrennerflamme.

Rechts: Visualisierung des OH-Moleküls mittels Laserinduzierter Fluoreszenz (Belichtungszeit: 50 ns). Links: Schema zum Foto. Die kleinen Pfeile stellen die lokale Flammgeschwindigkeit dar. Der große Pfeil repräsentiert die globale (integrale) Flammgeschwindigkeit. Die Flamme bewegt sich innerhalb der gestrichelt dargestellten turbulenten Reaktionszone.

ten. Mit zunehmender Wärmeleitfähigkeit verliert die Flamme zunehmend Wärme und brennt langsamer, während sie mit zunehmender Stoffdiffusivität zunehmend mit Brennstoff versorgt wird und somit heißer brennt. Wärmeleitfähigkeit und Stoffdiffusivität sind gemischabhängig, so dass manche Gemische diese Strukturbildung erwarten lassen können, während anderen dieses Verhalten fremd ist. Als einfache Regel kann festgestellt werden, dass sowohl bei fetten als auch bei mageren Gemischen mit Strukturbildung gerechnet werden muss, während nahe-stöchiometrische Mischungen oft ohne Strukturbildung brennen. Es muss also bei der für die Anwendung interessanten Magergemischverbrennung, aber auch im Fall der „stratifizierten Verbrennung“, bei der unterschiedliche Stöchiometrien im Brennraum gleichzeitig vorliegen, mit Strukturbildung auf der Flamme gerechnet werden.

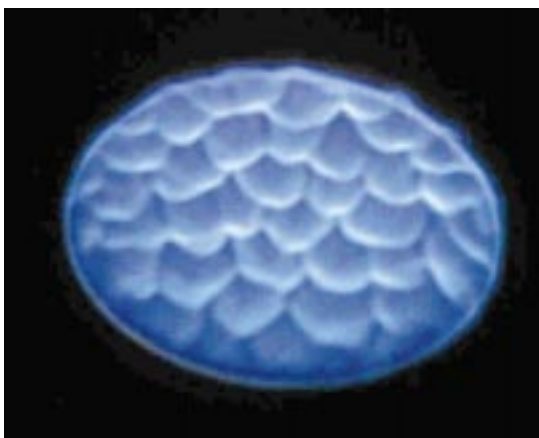


Abb. 4: Fotografie (Draufsicht) einer mageren, vorgemischten Methan-Luft-Flamme auf einem Flachflammenbrenner (Luftzahl = 1.5, 63 mm Durchmesser). Es zeigt sich ein charakteristisches, zellulares Muster.

Zellulare Vormischflammen

Im vorigen Abschnitt wurde die Phänomenologie der Verbrennung erläutert und der Bezug zur Anwendung dargestellt. Wir kommen jetzt zur Definition eines speziellen Problems, anhand dessen die Wechselwirkung von Flammenstrukturen mit Strömungsfeldern untersucht werden soll.

Betrachtet wird ein Flachflammenbrenner, aus dem ein vorgemischtes, brennbares Gas ausströmt. Dieses Gas wird in einer Vormischkammer gemischt und strömt dann durch eine ebene poröse Sintermetallplatte, die einen Durchmesser von mehreren Zentimetern besitzt, in die Brennzona. Für stöchiometrische Bedingungen liegt eine ebene Flamme vor, wobei sich in radialer Richtung praktisch keine Änderung der Strömungsgrößen ergeben. Kurz oberhalb der Sintermetallplatte verbrennt das Gas in einer Vormischflamme. Das Gemisch sei nun so zusammengesetzt, dass durch thermisch/diffusive Prozesse Flammenstrukturen wie oben beschrieben entstehen. Abb. 4 zeigt ein typisches Foto dieser Strukturen. Sie bestehen aus heißen Punkten auf der Flamme, die von kalten Rändern umgeben sind. Die Flamme wird in einzelne, zumeist regelmäßige Parzellen zergliedert, weshalb man von zellulärer Verbrennung spricht. Die Flammenstruktur in der Fotografie wurde erzeugt, indem bei einer Methan/Luft-Vormischflamme zunehmend magerere Gemischzusammensetzungen eingestellt wurden. Die ein-

zelnen Zellen haben einen Durchmesser von einigen Zehntel Millimetern bis hin zu Zentimetern. Die Größe der Zellen hängt ab von der Ausströmgeschwindigkeit des Gases aus dem Brenner und der Gemischzusammensetzung. Die Zellularmuster treten bevorzugt bei hohen Ausströmgeschwindigkeiten auf, wenn die Flamme einen großen Abstand vom Brenner aufweist und wenig vom Brenner beeinflusst wird.

Unsere weiteren Betrachtungen richten sich auf den Fall, wenn ein zelluläres Muster, wie das in der Abbildung gezeigte, in Wechselwirkung mit einer Strömung entlang der Flamme tritt. Dies ist ein einfaches Modell, das dem Verständnis turbulenter Verbrennung dienen soll. Die Strömung entlang der Flamme wird erzeugt, indem Hindernisse im Rauchgasgebiet eingebracht werden, denen die Strömung ausweichen muss.

Lasermesstechnik

Eine Vormischflamme, die ein zelluläres Muster aufweist, reagiert äußerst empfindlich auf Störungen. Sollen Messdaten in solch einer Flamme gewonnen werden, so erlauben nur optische, berührungsfreie Messverfahren unverfälschte Aussagen. Diese Verfahren nutzen die Tatsache, dass die Energie eines einzelnen Atoms oder Moleküls nur bestimmte Werte annehmen kann, also gequantelt ist [3]. Die Energiezustände eines Atoms werden durch die Besetzung der Elektronenschalen beschrieben.

Diese „elektronischen“ Zustände werden im Fall von Molekülen durch weitere Energiezustände unterteilt. Diese ergeben sich aus der Tatsache, dass Moleküle noch vibrieren und um ihre Trägheitsachsen rotieren können. Man spricht von „rotatorischen“ und „vibratorischen“ Energieniveaus. Die einzelnen Energieniveaus sind charakteristisch für die jeweilige Molekülart. Die Besetzung dieser Energieniveaus ist durch die Boltzmann-Verteilung als Funktion der Temperatur gegeben.

Am Institut für Kern- und Energietechnik (IKET) wird ein solches laseroptisches Messverfahren eingesetzt. Das Verfahren der Laserinduzierten Fluoreszenz erlaubt es, sowohl ausgewählte Zwischenprodukte der Verbrennung zu quantifizieren als auch die Temperatur berührungsfrei zu ermitteln [5,6].

Die Grundidee des Verfahrens besteht darin, die Gasmoleküle, deren Konzentration ermittelt werden soll, durch das Einstrahlen von Laserlicht einer exakt eingestellten Wellenlänge selektiv zur Fluoreszenz anzuregen. Die Energie der benutzten Photonen entspricht genau der Energiedifferenz zweier zuvor ausgewählter Energieniveaus der zu untersuchenden Molekülart. Nach kurzer Zeit (eine Milliardstel Sekunde) kehrt das Molekül aus dem angeregten Zustand unter Aussendung von Fluoreszenzlicht in den Grundzustand zurück. Diese Lichtintensität kann in eine Konzentration umgerechnet werden.

Um die Temperaturen zu messen, werden die Besetzungszustände verschiedener rotatorischer Energieniveaus ermittelt. Hierzu werden zwei LIF-Lasersysteme unterschiedlicher Lichtwellenlängen eingesetzt, die mit einem Zeitversatz von etwa einer millionstel Sekunde arbeiten. Aus dem Verhältnis der Fluoreszenzintensitäten kann dann auf die Temperatur zurückgeschlossen werden. Die Schwierigkeit des Verfahrens besteht in der geeigneten Abstimmung des Lasers, der geringen Fluoreszenzintensität und den kurzen Zeiten, in denen das Fluoreszenzlicht abgestrahlt wird.

In Abb.5 ist der Messaufbau eines LIF-Lasersystems schematisch dargestellt. Ein starker NdYag-

Laser (2 Joule Pulsenergie pro Laserpuls) erzeugt einen Laserpuls von extrem kurzer Dauer (8 milliardstel Sekunden). Mit diesem Laserpuls wird die Energie für einen farblich abstimmbaren Farbstofflaser bereitgestellt. Das Laserlicht des Farbstofflasers wird durch eine Optik in einer Raumrichtung aufgeweitet, so dass sich ein vertikal (oder horizontal) ausgerichtetes Lichtband von einigen Zentimetern Höhe und einer Dicke unter 1 mm ergibt. Dieses Lichtband wird durch eine Flamme geführt. Eine schnelle, senkrecht zu dieser Ebene angeordnete CCD-Kamera mit integriertem Bildverstärker misst das Fluoreszenzlicht der im Lichtband angeregten Moleküle in einem Zeitfenster von 10-500 milliardstel Sekunden nach dem

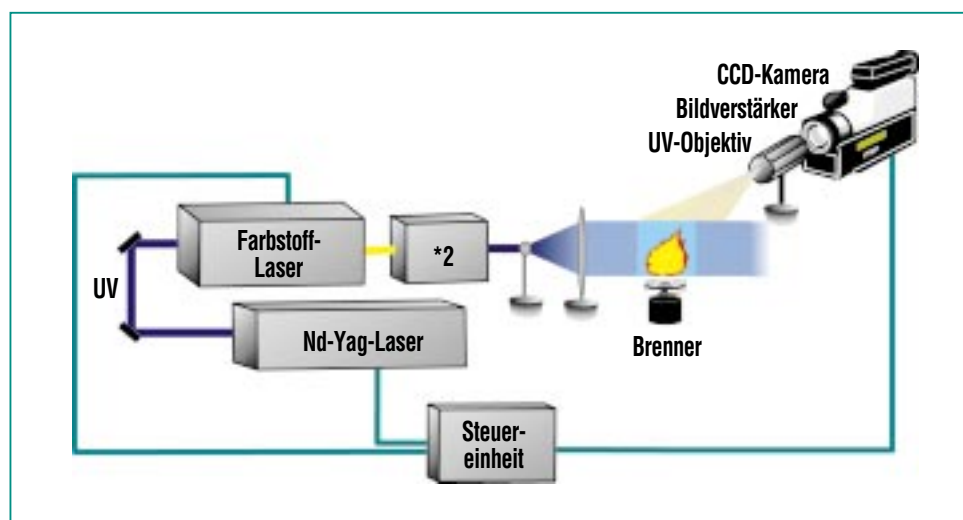


Abb. 5: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaues zur berührungsfreien OH-Konzentrationsmessung mittels Laserinduzierter Fluoreszenz (LIF). Das Licht eines gepulsten Nd-Yag-Lasers wird zum Pumpen eines abstimmbaren Farbstofflasers benutzt. Die Lichtwellenlänge des Farbstofflasers wird bei einer Linienbreite von etwa 5 pm im Bereich von 280-283 nm auf eine Anregungswellenlänge des OH-Moleküls eingestellt. Die Lichtschnittoptik liefert ein paralleles Lichtband, das über einen Brenner geführt wird. Eine senkrecht dazu angeordnete CCD-Kamera detektiert das Fluoreszenzleuchten des OH-Moleküls.

Farbstofflaserpuls. Bei der Temperaturmessung werden zwei gleichartige Systeme eingesetzt, deren Lichtbänder überlagert werden. Die Kamera nimmt mit einem zeitlichen Versatz von einer millionstel Sekunde zwei Bilder auf. Während dieses Zeitraumes können Temperaturänderungen vernachlässigt werden. Aus den Bildern wird flächenhaft das Temperatur- und Konzentrationsfeld eines Verbrennungszwischenprodukts im Lichtschnitt bestimmt. Abb. 6 zeigt beispielhaft die Konzentrationsverteilung des OH-Radikals in einer zellularen Flamme. Es steht Schwarz für die niedrigste Konzentration und Rot für eine Konzentration um 10 ppm (ppm = parts per million = 10^{-6}).

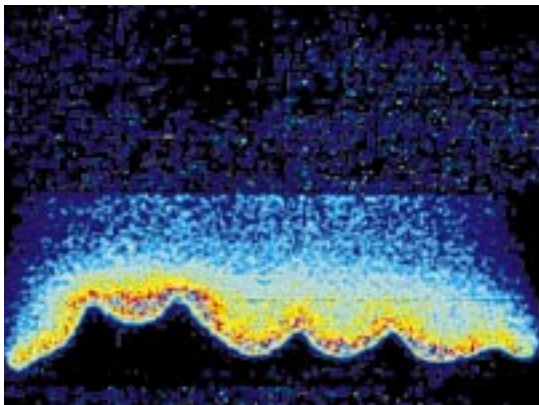


Abb. 6: Zweidimensionale OH-Konzentrationsverteilung in einer zellularen Flachflamme (vgl. Abb. 4). Die Aufnahme stellt einen senkrechten Schnitt durch eine Flamme in der Mittelebene dar. Die Messung erfolgte mittels Laserinduzierter Fluoreszenz. Das OH-Molekül dient als Visualisierungsmolekül, da es direkt in der Reaktionszone gebildet wird und sich dann langsam im Rauchgas abbaut.

Theorie

Die Bildung von komplexen Mustern auf der Flamme kann selbstverständlich nicht analytisch berechnet werden. Es kann lediglich erreicht werden, dass mit zusätzlichen Annahmen und mathematischen Methoden das ursprüngliche Problem in ein einfacheres umgewandelt wird. Dieses kann dann mit Hilfe eines Computers ausgewertet werden. Beim vorliegenden Fall beinhaltet das Ausgangsproblem die zeitabhängige, dreidimensionale Verteilung der Temperatur und der Konzentrationen um die Flamme. In unmittelbarer Nähe der Flamme gibt es über sehr kurze Distanzen starke Änderungen dieser Größen. Das mathematisch vereinfachte Problem beschreibt direkt den lokalen Abstand der Flamme zum Brenner als Funktion der Zeit. Wir bezeichnen die Abweichung dieses Abstands von einer ebenen Referenzflamme als ϕ . Damit reduziert sich die Anzahl der Unbekannten. Da der Abstand die dritte Dimension beinhaltet, verringert sich die Zahl der räumlichen Dimensionen von drei auf zwei. Die Richtung mit den stärksten Änderungen der Größen entfällt. Das vereinfachte Problem kann mindestens eine Million mal schneller auf einem Computer berechnet werden als das Ursprungsproblem. Eine direkte Lösung des Ursprungsproblems verbietet sich aufgrund des großen numerischen Aufwands.

Die Vereinfachung ergibt sich aus der Beobachtung, dass sich entlang der Flamme viel schwächere Änderungen ergeben als senkrecht zur Flamme. Das Problem wird zunächst unter Vernachlässi-

gung von Änderungen entlang der Flamme gelöst und dann kleine Korrekturen der Lösung vorgenommen. Diese sind abhängig von der lokalen Auslenkung ϕ (oder der Krümmung) der Flamme. Die Korrekturen werden in mehreren Schritten verfeinert, wobei die Auslenkung der Flamme anfangs unbestimmt bleibt. Im dritten Korrekturschritt zeigt sich, dass die Auslenkung nicht beliebig gewählt werden darf, da andernfalls der Ansatz zum Widerspruch führt. Dieser Widerspruch kann nur aufgelöst werden, wenn die Auslenkung ϕ der Flamme aus einer ebenen Flammenfront einer Bewegungsgleichung genügt:

$$\partial_t \phi + \nabla^4 \phi + 2\nabla^2 \phi + (\nabla \phi)^2 + \mathbf{v} \cdot \nabla \phi + \alpha \phi = 0$$

Hier ist ∂_t die Zeitableitung, \mathbf{v} stellt das zweidimensionale Geschwindigkeitsfeld tangential zur Flamme dar und $\alpha > 0$ charakterisiert die Mischung. Es ist $\nabla = (\partial_x, \partial_y)$ der zweidimensionale Nabla-Operator, der räumliche Ableitungen tangential zur Flammenfront beschreibt. Die Gleichung wird nach ihrem Entdecker als eine modifizierte Kuramoto-Sivashinsky-Gleichung (KS) [7] bezeichnet, wobei hier ein Geschwindigkeitsterm und ein Dämpfungsterm hinzu kommen [1]. Die KS-Gleichung ist neben der Ginzburg-Landau-Gleichung (GL) eine der generischen Gleichungen zur Beschreibung von Strukturbildung in instabilen Prozessen. Während die GL-Gleichung die räumlich gemittelte Amplitude einer Struktur beschreibt, liefert die KS-Gleichung lokale Informationen. Durch räumliche Mittelung lässt sich aus einer KS-Gleichung eine GL-Gleichung herleiten [2].

Ist in der KS-Gleichung der Parameter α größer als 1 liegt eine ebene Flamme vor. Für Werte zwischen 0 und 1 beschreibt die Gleichung das räumlich/zeitliche Verhalten der Flamme, wobei mit abnehmenden α die Komplexität bis hin zum Chaos zunimmt. In diesem Bereich, $0 < \alpha < 1$, wird Strukturbildung erwartet, weshalb wir uns im folgenden auf diesen Bereich beschränken.

Wir fragen uns hier, welche Auswirkung eine Modifikation des Geschwindigkeitsfeldes auf die Flamme hat. Es soll an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen werden, dass im turbulenten Fall dieses Strömungsfeld zeitlich veränderlich ist. Es stellt sich auch die Frage, ob die Strömung die Entstehung zellulärer Strukturen verhindern oder gar fördern kann. Wie sieht die Struktur der Flamme in Gegenwart der Strömung aus? Um Einblicke in diese Fragestellungen zu gewinnen, untersuchen wir einige der einfachsten stationären Strömungsfelder.

Die Zellteilungskaskade

Das betrachtete Strömungsfeld ist schematisch in Abb. 7 dargestellt. Oberhalb des Brenners ist eine Stauplatte angeordnet, so dass die Strömung zu beiden Seiten ausweichen muss. Die Radialkomponente der Strömung nimmt mit wachsendem Radius vom Zentrum aus zu. Zunächst zeigt sich, dass eine ebene Flamme stabil bezüglich kleiner Störungen ist, so dass die Flamme erst zelluläre Strukturen entwickelt, wenn sie einmalig mit einer hinreichend großen Störung versehen wird. Im allgemeinen sind die notwendigen Störungen außerordentlich klein, so dass im Experiment die Strukturbildung spontan beobachtet wird. Auf dem Computer muss dagegen eine anfängliche Störung ins System eingebracht werden. Wir wählen eine Störung, deren Form etwa einer Zelle im Zentrum des Brenners entspricht. Abb. 8 zeigt die zeitliche Entwicklung des Musters. Für α wurde ein Wert um 0,9 gewählt. Nach oben ist die

Zeitachse aufgetragen. Die horizontale Richtung entspricht der räumlichen Ausdehnung des Brenners. Die Farben stehen für die Auslenkung ϕ der Flamme

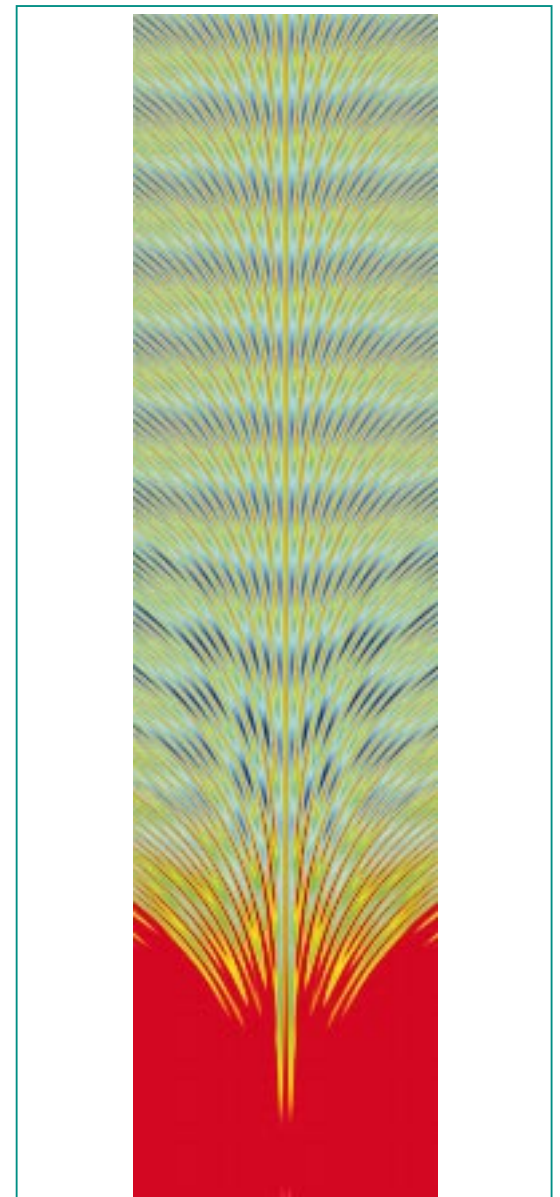


Abb. 8: Numerische Simulation: Zellteilungskaskade. Nach oben ist die Zeit aufgetragen. Die Farbe steht für den Abstand der Flamme vom Brenner. Die Zellen wandern mit der Strömung nach außen. In regelmäßigen Zeitabständen (horizontale Streifen oben) teilen sich die Zellen.

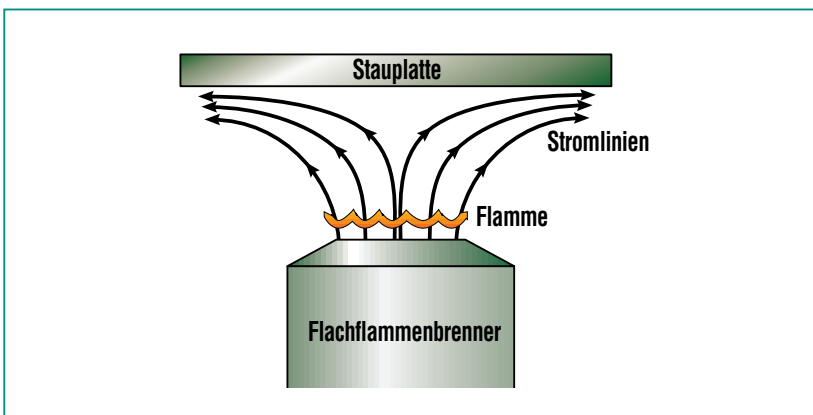


Abb. 7: Experimenteller Aufbau zur Realisierung der Zellteilungskaskade. Über dem Brenner ist eine Stauplatte angebracht, so dass die horizontale Geschwindigkeitskomponente des aus dem Brenner ausströmenden Gases in radialer Richtung ansteigt.

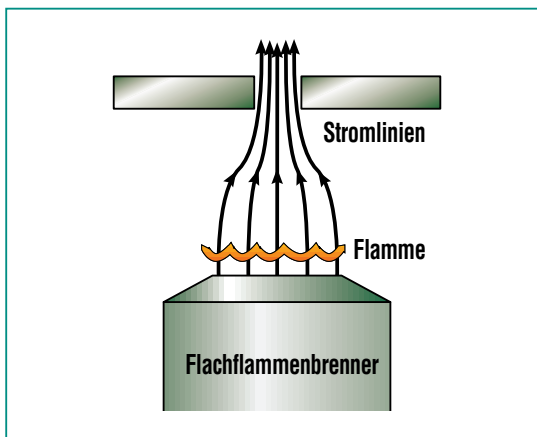


Abb. 9: Experimenteller Aufbau zur Realisierung lokalisierter Muster. Über dem Brenner ist eine Lochplatte angebracht, so dass die Strömung zur Brennermitte hin ausweichen muss.

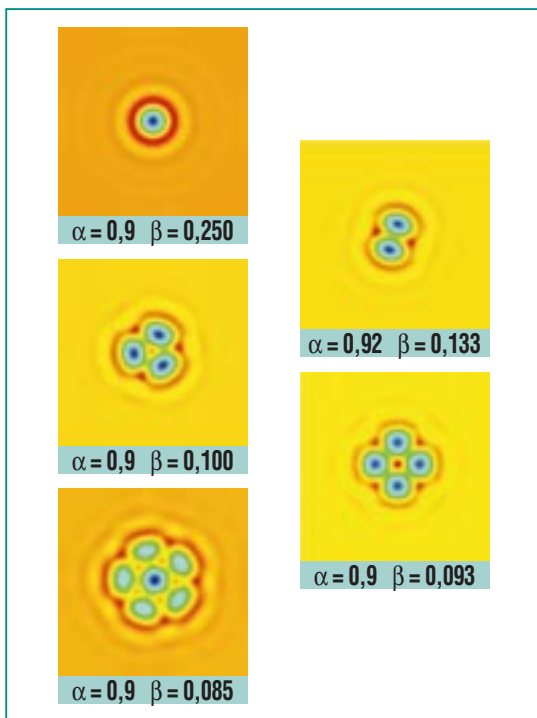


Abb. 10: Numerische Simulation: Draufsicht auf lokalisierte Muster im Brennerzentrum für verschiedene große Lochblenden. In der Flammebene liegt näherungsweise ein Staupunktströmungsfeld $\mathbf{v} = (-\beta x, -\beta y)$ vor. Für kleine Öffnungen (oben) ist β groß und es liegt eine einzelne Zelle vor. Mit abnehmenden β nimmt die Zahl der Zellen zu.

aus dem ebenen Referenzzustand, wobei Blau für Auslenkungen in Richtung des Brenners und Rot für Auslenkungen weg vom Brenner steht.

Zunächst zeigt sich, dass die Zelle durch das nach außen hin zunehmende Strömungsfeld lateral gedehnt wird. Sie wächst in ihrer Größe an. Hat die Zelle etwa ihre Größe verdoppelt, so teilt sie sich in zwei Zellen. Jede einzelne dieser Zellen wird weiter durch das Strömungsfeld gedehnt und wächst in ihrer Größe an. Wieder nach einer Verdopplung ihrer Anfangsgröße teilen sich die Zellen, so dass dann vier Zellen vorliegen. Der Vorgang wiederholt sich immer so fort, wobei sich jeweils nach einer charakteristischen Zeit die Zahl der Zellen verdoppelt. Mit jeder Zellteilung geht eine Auf- und Abbewegung der ganzen Flamme einher. Dies zeigt sich durch horizontale Streifen im oberen Bereich der Abbildung. Die Größe des von Zellen bedeckten Gebiets wächst exponentiell an. Bemerkenswert ist die Ähnlichkeit des Vorgangs mit der Zellteilung in der Biologie, weshalb wir den Namen Zellteilungskaskade für den Vorgang gewählt haben. Die zwei- und dreidimensionalen Varianten dieses Vorgangs zeigen das Wachstum und die Teilung von runden oder langgestreckten Zellen.

Der hier dargestellte Fall zeigt ein geordnetes Wachstum der Zellen, d.h. jede einzelne Zelle entwickelt sich in zwei neue Zellen und der Verdopplungsprozess erfolgt in regelmäßigen Zeitabständen. Wird eine Mischung mit kleinerem α oder eine schwächere

Strömung gewählt, so läuft der Vorgang bei weitem nicht so regelmäßig ab. Es gibt dann Zellen, die sich in drei teilen und andere die aussterben. Es gibt Zellen, die sich über längere Zeit nicht teilen und solche die sich schon nach sehr kurzer Zeit wieder teilen. Der ganze Zellhaufen wächst dennoch etwa exponentiell in seiner Größe an.

Lokalisierte Muster

Wir untersuchen jetzt den Fall, bei dem das Strömungsfeld nach innen gerichtet ist. Dies wird experimentell verwirklicht, indem eine Platte mit einem zentralen Loch oberhalb des Brenners angeordnet wird (vgl. Abb. 9). Die Strömung muss also nach innen ausweichen. Wieder gilt, dass die ebene Flamme hinreichend stark gestört werden muss, damit eine Musterbildung einsetzt. Bei starker Strömung kann sich jedoch kein Muster entwickeln. In Abb. 10 sind Momentaufnahmen von zellularen Mustern für verschiedene Stärken der Strömung in ihrer Draufsicht auf den Brenner dargestellt. Die Farben stehen wieder für den Abstand der Flamme vom Brenner. Es handelt sich um einzelne Zellen, die im Zentrum des Brenners lokalisiert sind. Diese ordnen sich mit wachsender Anzahl in einer regelmäßigen hexagonalen Struktur an, wie die Atome in einer kristallinen Struktur. Mit abnehmender Stärke der Strömung und des Faktors α nimmt die Größe des Gebietes mit Musterbildung zu und die Ordnung innerhalb des Gebietes ab. Es entstehen Fehlstellen und das Muster zeigt ein komplexes Zeitverhalten. Für kleine α verliert

die Struktur ihre Ordnung und es entsteht, um bei dem Sinnbild des Kristalls zu bleiben, eine amorphe Zellstruktur.

In Abb. 11 ist ein Muster, bestehend aus einer zentralen Zelle, die von sieben Zellen umgeben ist, dargestellt. Das Zeitverhalten des Musters hat uns dazu angeregt, es als „springende Pferdchen auf dem Kinderkarussell“ zu bezeichnen. Die Zellen gehen dabei hoch und runter wie die Pferdchen auf einem Kinderkarussell, wobei in der Abfolge immer zwei Pferdchen übersprungen werden. Dieser Auf-und-Abbewegung ist zusätzlich eine langsame Drehbewegung der ganzen Anordnung überlagert. Muster wie sie in Abb. 10 und 11 dargestellt sind, wurden auch experimentell gefunden [4].

In Abb. 12 ist schließlich eine lokalisierte Zellanordnung dargestellt, die aus vielen Zellen besteht. Um das Raum/Zeit-Verhalten des Musters zu veranschaulichen, wollen wir wieder einen Vergleich aus dem täglichen Leben heranziehen, und über die Karriereleiter einer Zelle sprechen. Die Zellen im Muster seien die Mitarbeiter einer größeren Firma. Deutlich erkennbar sind große geordnete Bereiche innerhalb der Firma, d.h. die Institute oder Abteilungen. Ziel jedes Einzelnen aber auch der Abteilungen ist es, ins Zentrum der Firma zu rücken, um dort eine ausgezeichnete Stelle einzunehmen. Am Rand der Abteilungen ist die Struktur weniger geordnet und es kann vorkommen, dass ein Mitarbeiter von einer Gruppe in eine benachbarte Gruppe wechselt.

Zudem sind die Mitarbeiter am Rande der Gruppen oft beweglich und können sich durch häufiges Wechseln schneller in Richtung Zentrum vorarbeiten als diejenigen, die sich in starken Abteilungen befinden. Im Laufe der Wanderbewegung der Zellen zum Mittelpunkt steht immer weniger Platz zur Verfügung, sodass einzelne Zellen verschwinden; der Mitarbeiter kündigt. Wenn dies passiert, rücken alle Mitarbeiter ein Stückchen nach innen vor und im äußeren Bereich werden wieder neu zu besetzende Stellen frei. Ist α klein, so ist die Abteilungsstruktur der Firma wesentlich schwächer ausgeprägt und die Dauer des Beschäftigungsverhältnisses der Mitarbeiter ist stark unterschiedlich. Es gibt dann auch Quereinsteiger und weniger Mitarbeiter die „von der Pike auf lernen“, also am Rande der Firma anfangen.

Hexagonale Strömung

Bislang haben wir Strömungsfelder betrachtet, die nur einen einzelnen ausgezeichneten Punkt, das Zentrum, aufweisen. Wir wollen die Betrachtung jetzt auf eine etwas komplexere Anordnung erweitern. Oberhalb des Brenners werden runde Prallplatten in hexagonaler Anordnung angebracht. Die Strömung muss diesen ausweichen und durch die Spalte zwischen den Platten ausströmen. Es entsteht ein hexagonales Strömungsfeld in der Flammebene mit nach außen gerichteter Staupunktströmung im Zentrum der Hexagone unterhalb der Prallplatten. Abb. 13 zeigt ein berechnetes Muster, wobei die Strömung so stark gewählt wur-

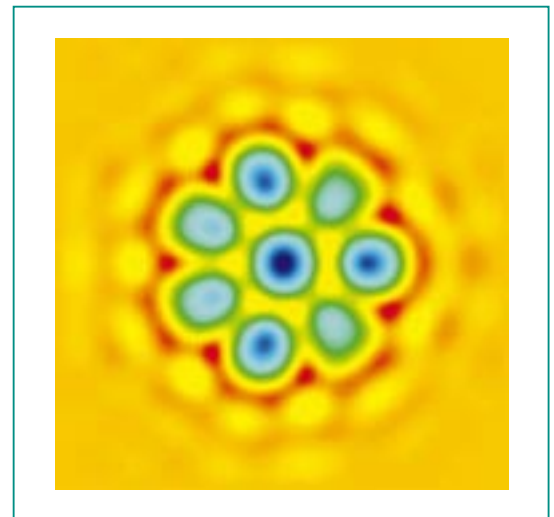


Abb. 11: Numerische Simulation: Draufsicht auf ein lokalisiertes Muster „Springende Pferdchen auf dem Kinderkarussell“ ($\alpha=0,81$, $\beta=0,05$). Die einzelnen Zellen führen eine Auf- und Abbewegung aus, während sich das ganze Muster langsam um seine Achse dreht.

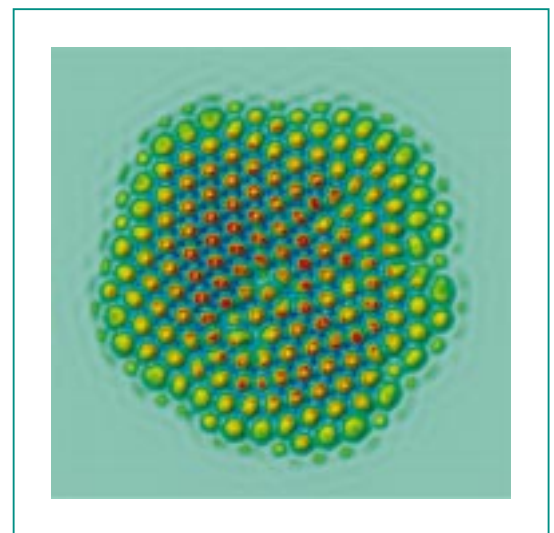


Abb. 12: Numerische Simulation: Draufsicht auf ein lokalisiertes Muster „Karriereleiter einer Zelle“ ($\alpha=0,93$, $\beta=0,022$). Die Zellen bewegen sich auf das Zentrum des Musters zu. Im Inneren des Musters verschwinden einzelne Zellen während am Rand des Musters neue Zellen entstehen. (vgl. <http://www.fzk.de/iket/movies/carrier-cellmovie.avi>)

de, dass sie gerade nicht ausreicht, um eine Musterbildung zu verhindern. Das Muster zeigt ein Abbild der Grenze der hexagonalen Struktur. Obwohl im Strömungsfeld nur schwache Ge-

schwindigkeitsänderungen auftreten, ist die Zellgrenze sehr deutlich ausgeprägt. Zellen bilden sich ausschließlich entlang der Staulinien am Rand der Hexagone.

Der Vorgang wiederholt sich periodisch in der Zeit.

Das Verhalten der Muster in hexagonalen Strömungsfeldern lässt sich mit dem Verhalten in Staupunktströmungen verstehen. Als zusätzliches Element kommen im wesentlichen langgestreckte Zellen, die Staupunkte miteinander verbinden, hinzu.

Zusammenfassung

Bedingt durch die thermisch-diffusive Instabilität können auf Vormischflammen zelluläre Muster entstehen. Diese sind von Bedeutung für die Qualität der Verbrennung, da sie die Ursache für unvollständige Verbrennung und einen erhöhten Schadstoffausstoß sein können. Die Untersuchung der grundlegenden Eigenschaften der Flammenmuster erfolgt experimentell mit laseroptischen Methoden und theoretisch auf der Basis einer Kuramoto-Sivashinsky-Gleichung.

Die Muster treten in Wechselwirkung mit dem Strömungsfeld entlang der Flamme auf. Bei einer nach außen gerichteten Staupunktströmung ist das charakteristische Muster die Zellteilungskaskade, bei nach innen gerichteter Staupunktströmung sind es lokalisierte Muster. Entlang von Staulinien entstehen langgestreckte Zellen.

Komplexere Strömungsfelder sind durch charakteristische Punkte und Linien ausgezeichnet. In der Umgebung dieser ausgezeichneten Punkte und Linien verhält sich das Muster wie in den Fällen mit nur einem ausgezeich-

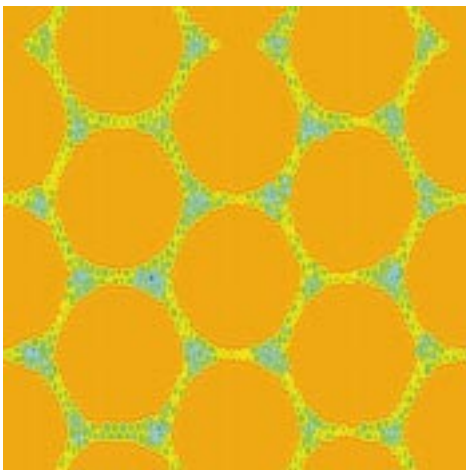


Abb. 13: Numerische Simulation: Draufsicht auf ein zelluläres Muster in hexagonaler Strömung: Scharf begrenzte Musterbildung am Rand der Hexagone (vgl. <http://www.fzk.de/iket/movies/hexagonmovie.avi>).

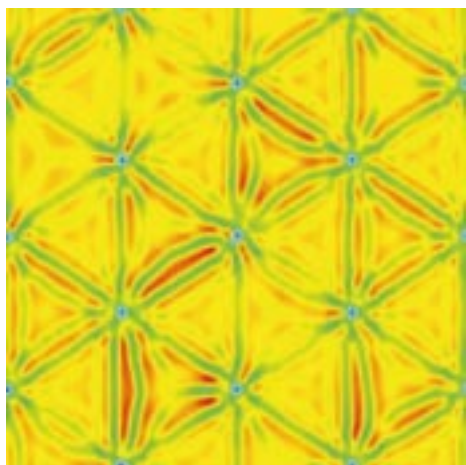


Abb. 14: Numerische Simulation: Hexagonale Strömung: Die Strömung ist auf das Zentrum (blaue Zellen) der Hexagone hin gerichtet.

Wird anstelle der Hindernisse eine Platte mit hexagonal angeordneten Löchern benutzt, dreht sich die Richtung der Strömung in der Flammebene. Die Strömung ist jetzt auf die Zentren der Hexagone hin gerichtet. In diesem Fall ergeben sich in der Umgebung der Zentren der Hexagone lokalisierte Muster, wie die oben beschriebenen. An der Grenze der Hexagone findet keinerlei Musterbildung statt.

Schließlich ist in Abb. 14 ein Muster dargestellt, bei dem die Strömung so schwach eingestellt wurde, dass im ganzen Gebiet Musterbildung einsetzt. Wieder sind die Mitten der Hexagone ausgezeichnet, da die Strömung auf diese hin gerichtet ist. Die Zentren benachbarter Hexagone sind jetzt durch langgestreckte Zellen miteinander verbunden, die sich unregelmäßig bewegen. Um das Zentrum jedes Hexagons herum sind sechs Staupunkte angeordnet. In deren Umgebung kann eine zweidimensionale Variante der Zellteilungskaskade beobachtet werden. Vom Staupunkt aus verlaufen langgestreckte Zellen in alle Richtungen. Dort wo der Abstand zwischen den Strahlen es zulässt, wird die Lücke durch weitere Strahlen ausgefüllt. Die Strahlen werden mit der Strömung vom Staupunkt wegtransportiert, so dass neue Zwischenräume entstehen, in denen neue Strahlen entstehen können.

neten Punkt. Das Verständnis der einfachen Muster bildet somit die Grundlage zur Deutung des Verhaltens zellulärer Muster in komplexen Verhältnissen.

Zukünftige Arbeiten auf diesem Gebiet zielen darauf, die Musterbildung mit höherem Detaillierungsgrad der Modelle zu beschreiben, so dass neben qualitativen Aussagen auch verlässliche quantitative Daten geliefert werden können. Schließlich sollen die Erkenntnisse genutzt werden, um Modelle für turbulente Flam-

men, bei denen die Eigendynamik der Flamme und Musterbildung wichtig ist, zu entwickeln.

Die hier betrachtete Kuramoto-Sivashinsky-Gleichung ist eine generische Gleichung, die das nichtlineare Verhalten dynamischer Systeme an der Stabilitätsgrenze beschreibt, und kann für viele unterschiedliche Problemstellungen hergeleitet werden. So werden beispielsweise Oberflächenwellen einer Filmströmung auf einer schiefen Platte durch die KS-Gleichung be-

schrieben. Die daraus gewonnenen Ergebnisse sind somit auch auf andere Probleme, in denen zelluläre Strukturen von Bedeutung sind, übertragbar.

Der Vergleich zwischen den berechneten Flammenmustern und experimentell gemessenen Mustern ist Gegenstand derzeitiger Untersuchungen.

Literatur

- [1] A. G. Class,
in J. Parisi, S. C. Müller,
W. Zimmermann (eds.),
*A perspective look at nonlinear
media in physics, chemistry,
and biology*, Springer, Berlin,
(1998), 61
- [2] A. G. Class, L. Bühler,
S. H. Davis,
Physical Review Letters, 80(20),
(1998), 4414
- [3] A. C. Eckbreth,
*Laser Diagnostics for
Combustion Temperature and
Species*, Abacus Press,
Cambridge, USA, (1988)
- [4] M. Gorman, M. el-Hamdi,
K. Robbins,
Combust. Sci. And Tech., 98,
(1994), 37
- [5] K. J. Rensberger,
J. B. Jeffries, R.A. Copeland,
K. Kohse-Höinghaus, M. L. Wise,
D. R. Crosley,
Applied Optics, 28 (17), (1989),
3556
- [6] K. Kohse-Höinghaus,
U. E. Meier,
*3rd Int. Symposium on Special
Topics in Chemical
Propulsion: Non-Intrusive
Combustion Diagnostics*,
Scheveningen, (1993).
- [7] G. I. Sivashinsky,
Acta Astronautica, 18, (1973), 253

Numerische Simulation der turbulenten Verbrennung von vorgemischten Gasen in komplexen 3D-Geometrien

A. Kotchourko, W. Breitung, IKET

1. Einleitung

1.1 Problemstellung

Die realistische Berechnung von turbulenten reaktiven Strömungen für wissenschaftliche oder anwendungsbezogene Zwecke erfordert numerische Modelle, die in der Lage sind Strömung, Turbulenz, chemische Reaktion und die komplexe Wechselwirkung dieser Phänomene angemessen zu beschreiben.

Der Einsatz von fortgeschrittenen Modellen, wie z.B. Large-Eddy-Simulation (LES) oder direkte nu-

merische Simulation (DNS) ist zwar wünschenswert, aber selbst mit heutigen Hochleistungsrechnern ist damit nur in Ausnahmefällen die Lösung praktischer Probleme möglich. Der gängigste Ansatz beruht deshalb auf vereinfachten Turbulenzmodellen, sog. Reynolds-Spannungsmodellen, kombiniert mit reduzierten Chemiemodellen. Die prinzipiellen Beschränkungen solcher Modellansätze sind wohlbekannt, aber derzeit besteht keine überzeugende Alternative, insbesondere wenn es um die Simulation turbulenter Verbrennungen im industriellen Maßstab geht.

Am häufigsten werden heute sog. k- ϵ -Modelle für die Turbulenz und statistische Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (PDF = probability density function) oder Eddy-Break-Up Modelle für die chemischen Reaktionsraten eingesetzt, obwohl es bisher keine umfassende Studie über die Möglichkeiten und Grenzen solcher Ansätze gibt. Andererseits ist es für Anwendungsrechnungen eine sinnvolle Strategie zunächst zugegebenermaßen vereinfachte, aber schnelle numerische Modelle einzusetzen. Wo diese versagen, kann dann auf komplexere Theorien zurückgegriffen werden.

Die Zielsetzung der hier beschriebenen Arbeiten besteht deshalb darin, die turbulenten Verbrennungsprozesse von wasserstoffhaltigen Brenngasen in komplexen Geometrien in einem weiten Parameterbereich systematisch zu studieren, und zu untersuchen, inwieweit vereinfachte Modelle für die numerische Simulation geeignet sind.

1.2 Klassifikation turbulenter Verbrennungen

Turbulente Verbrennungsprozesse in vorgemischten Gasen werden in der neueren Literatur oft unterschieden nach der turbulenten Schwankungsgeschwindigkeit u' und dem turbulenten Makrolängenmaß L_t der Strömung. Das dabei verwendete sog. Borghi-Diagramm ist in Abb. 1 dargestellt.

Die Turbulenzgrößen u' und L_t werden auf die Geschwindigkeits- und Längenskala der lami-

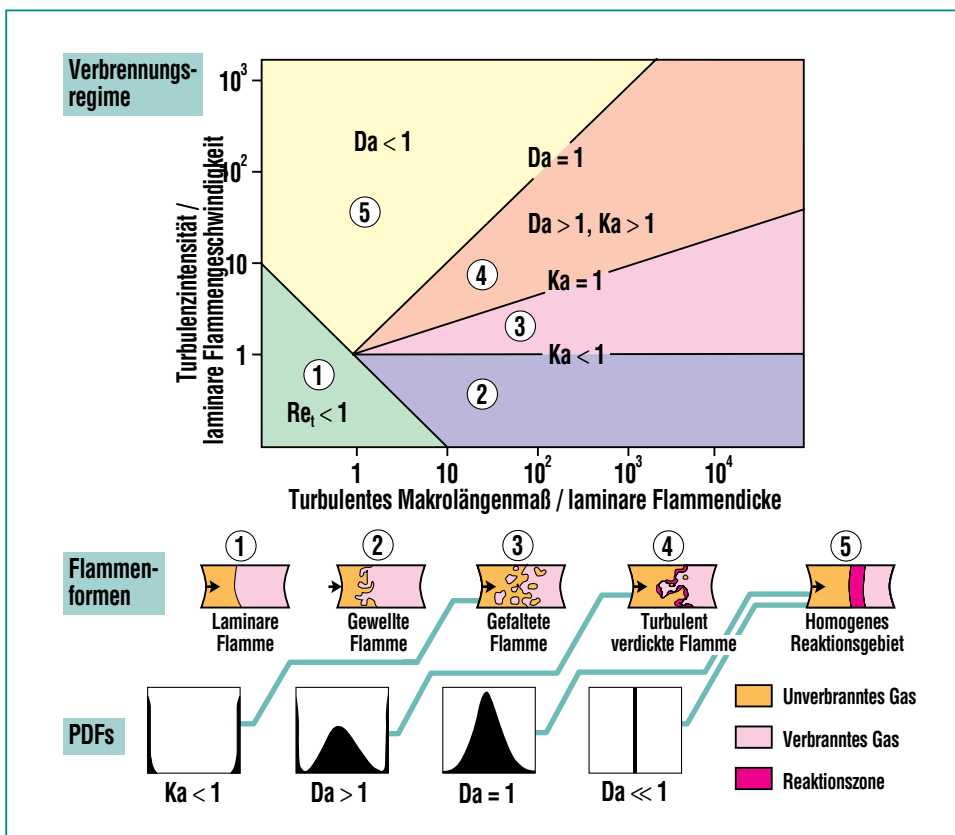


Abb. 1: Borghi-Diagramm zur Klassifikation turbulenter Verbrennungsformen mit Hilfe von dimensionslosen Kennzahlen; Re_t = turbulente Reynolds-Zahl, Ka = turbulente Karlovitz-Zahl, Da = turbulente Damköhler-Zahl. Ka und Da vergleichen die charakteristischen Zeitskalen von laminarer Reaktionszeit, turbulenter Transportzeit der kleinsten und der größten Wirbel.

naren Verbrennung bezogen, nämlich die laminare Flammengeschwindigkeit S_L und die laminare Flammendicke δ_L . Beide hängen nur von den Stoffeigenschaften des Gasgemisches ab, aber nicht von den Strömungszuständen. Der so definierte Parameterraum für turbulente vorge-mischte Verbrennung wird durch drei dimensionslose Kennzahlen in fünf charakteristische Verbrennungsbereiche unterteilt.

Die turbulente Reynolds-Zahl Re_t beschreibt den Einfluß des Turbulenzfeldes auf die Flammenform:

$$Re_t = \frac{u' L_t}{\nu}, \quad (1)$$

wobei ν die kinematische Viskosität darstellt.

Wenn die turbulente Reynolds-Zahl Re_t kleiner als 1 ist, liegt eine quasi-laminare Verbrennung vor. Die übrigen Bereiche in Abb. 1 werden durch die turbulente Karlovitz-Zahl und Damköhler-Zahl definiert. Die Karlovitz-Zahl beschreibt das Verhältnis von laminarer Reaktionszeit ($= \delta_L / S_L$) und turbulenter Transportzeit der kleinsten Wirbel (l_k / u'_k), der sog. Kolmogorov- Wirbel:

$$Ka = \frac{\delta_L / S_L}{l_k / u'_k} \quad (2)$$

Die turbulente Damköhler-Zahl beschreibt das Verhältnis der größten turbulenten Transportzeit (L_t / u') zur laminaren Reaktionszeit (δ_L / S_L):

$$Da = \frac{L_t / u'}{\delta_L / S_L} \quad (3)$$

(Aus historischen Gründen sind die Kennzahlen in (2) und (3) lei-

der invers definiert). Die Größe der turbulenten Wirbel in einem turbulenten Strömungsfeld reicht vom Makrolängenmaß L_t bis zum Mikrolängenmaß der kleinsten Wirbel, der sog. Kolmogorov-Länge l_k .

Im Bereich 2 von Abb. 1 liegt die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit unter der laminaren Flammengeschwindigkeit. Es treten zwar leichtgewellte, aber in ihrer inneren Struktur noch laminare Flammen auf.

Im Bereich 3 sind die Turbulenzwirbel schon in der Lage, die Flammenfront lokal zu verzögern oder zu beschleunigen. Diese gefaltete Flammen haben auch noch einen lokal laminaren Aufbau, brennen aber in verschiedenen Bereichen wegen Krümmungs- und Dehnungseffekten mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten.

Im Bereich 4 können die kleinsten Wirbel in die Flammenfront eindringen und die dünne, laminare Struktur, die meist im Bereich 0.1 – 1 mm liegt, zu einer verdickten Flammenfront verändern. Im Unterschied zu den Bereichen 2 und 3, in denen die Brenngeschwindigkeit durch Auffalten und Vergrößern der laminaren Flammenoberfläche erhöht wird, geschieht dies im Bereich 4 vor allem durch die schnelleren, turbulenten Transportvorgänge innerhalb der Flammenzone. Mit steigendem u' können zunehmend größere Wirbel den Stoff- und Wärmetransport in der Flamme beschleunigen ($\tau_{\text{turb}} = L_t / u'$).

Längs der Linie $Da = 1$ läuft der turbulente Transport auf der gleichen Zeitskala ab wie die chemische Reaktion. Bei weiterer Beschleunigung des turbulenten Transports ($Da < 1$) wird reagiertes und unreakiertes Gas rasch vermischt, ehe es dann in einer relativ langsamen Reaktion ausbrennt. Die Brennrates wird jetzt durch die Reaktionskinetik bestimmt und nicht mehr durch Mischungsvorgänge zwischen verbranntem und unverbranntem Gas. Diese Situation besteht in Bereich 5 von Abb. 1.

Ziel der hier beschriebenen Untersuchungen ist es einen möglichst weiten Parameterbereich im Borghi-Diagramm modellmäßig abzudecken. Hierfür wurde im Institut für Kern- und Energietechnik (IKET) des FZK das Programm COM3D entwickelt.

2. Modelle des COM3D Programms

Im folgenden werden die Modellgleichungen des COM3D-Programms und die zur Lösung der Gleichungen eingesetzten numerischen Verfahren kurz beschrieben. Die Gleichungen selbst sind in Abb. 2 angegeben. Die physikalischen Größen werden im Anhang in der Reihenfolge ihres Auftretens definiert.

2.1 Gasdynamik und Turbulenz

Das **gasdynamische Modell** umfaßt gemittelte Erhaltungsgleichungen für Gesamtmasse, Impuls, Energie und alle Speziesmassen. Die Zustandsvariablen sind über die Dichte gemittelte

Gasdynamisches Modell

Erhaltung der Gesamtmasse

$$(\rho)_t + (\rho u_i)_{x_i} = 0,$$

Impulserhaltung

$$(\rho u_i)_t + (\rho u_i u_j)_{x_j} = \rho g_i - p_{x_i} + M_{ij,x_j}, \quad i = 1, 2, 3$$

Energieerhaltung

$$(\rho e)_t + ((\rho e + p) u_i)_{x_i} = \rho g_j u_j + u_i M_{ij,x_j} + \left(\frac{\mu_{\text{tur}}}{C_h} \left(e - \frac{1}{2} u_i u_i + \frac{p}{\rho} \right)_{x_i} \right)_{x_i} + B + \rho \varepsilon,$$

Massenerhaltung für Gasspezies α

$$(\rho f_\alpha)_t + (\rho f_\alpha u_i)_{x_i} = \tilde{\omega}_\alpha + \left(\frac{\mu_{\text{tur}}}{C_{f_\alpha}} f_{\alpha,x_i} \right)_{x_i},$$

mit $e = \sum_{\alpha=1}^N \frac{f_\alpha}{\mu_\alpha} (h_\alpha + \Delta h_\alpha^0 - RT) + \frac{1}{2} u_j u_j, \quad f_\alpha = \frac{\rho_\alpha}{\rho}.$

Turbulenzmodell

Turbulente kinetische Energie k

$$(\rho k)_t + (\rho k u_i)_{x_i} = S - \rho \varepsilon + \left(\frac{\mu_{\text{tur}}}{C_k} k_{x_i} \right)_{x_i},$$

Dissipationsrate ε

$$(\rho \varepsilon)_t + (\rho \varepsilon u_i)_{x_i} = \frac{\varepsilon}{k} (C_1 S - C_2 \rho \varepsilon) + \left(\frac{\mu_{\text{tur}}}{C_\varepsilon} \varepsilon_{x_i} \right)_{x_i},$$

$$M_{ij} = -\frac{2}{3} \delta_{ij} (\rho k + \mu_{\text{tur}} u_{r,x_r}) + \mu_{\text{tur}} (u_{i,x_j} + u_{j,x_i})$$

$$S = u_{i,x_j} M_{ij} - B; \quad B = \frac{\mu_{\text{tur}}}{C_p} \frac{1}{\rho^2} \rho_{x_r} \rho_{x_r} \quad \mu_{\text{tur}} = \mu + C_\mu \rho \frac{k^2}{\varepsilon}.$$

Verbrennungsmodell

$$\tilde{\omega}_\alpha = \int \int \dots \int \omega_\alpha(f_1, f_1, \dots, f_N) F(f_1, f_2, \dots, f_N) df_1, df_2, \dots, df_N.$$

Abb. 2: Modellgleichungen des COM3D-Programms.

Werte (Favre-Mittelung), was eine wesentlich kompaktere Schreibweise als die einfache Zeitmittelung erlaubt. Alle Gleichungen sind skalar bis auf die Impulserhaltung. Die Gleichun-

gen für Energie und Speziesmassen enthalten Terme für die chemische Reaktionsrate. Die Relationen sind in der verkürzten Tensorform geschrieben: Index t = Zeitableitung, Index x_i = Sum-

me der Ortsableitung nach x, y , und z . Der zweite Term der Gesamtmasseenerhaltung bedeutet z.B.:

$$(\rho u_j)_{x_j} \equiv \frac{\partial \rho u}{\partial x} + \frac{\partial \rho v}{\partial y} + \frac{\partial \rho w}{\partial z} \quad (4)$$

Die linke Seite der Gleichungen enthält die zeitliche Änderung der jeweiligen Zustandsgröße und den konvektiven Transport. Auf der rechten Seite stehen diffusiver Transport sowie weitere Quellen und Senken, die sich aus Turbulenz und chemischer Reaktion ergeben. Die einzelnen Terme können hier aus Platzgründen nicht weiter erläutert werden. Eine einführende Darstellung ist bei Görner zu finden [1]. Strahlung wird wegen den hier interessierenden kurzen Zeitskalen und der geringen Emissivität von H_2 -Luft-Verbrennungsprodukten vernachlässigt.

Das verwendete **k- ε Turbulenzmodell** zählt zu den 2-Gleichungsmodellen, bei denen die Turbulenz mit zwei richtungsunabhängigen (isotropen) Größen, der turbulenten kinetischen Energie k und der Dissipationsrate ε , beschrieben wird. Die beiden Transportgleichungen definieren eine charakteristische Turbulenzlänge ($k^{3/2}/\varepsilon$) und einen turbulenten Zeitmaßstab (k/ε). Das k- ε Modell enthält freie Parameter, die an stationären, inkompressiblen Strömungen justiert wurden (Tab. 1) [2]. In den k- ε Gleichungen wird die Modellkonstante C_μ zur Berechnung der effektiven turbulenten Viskosität μ_{tur} benutzt.

Für stark anisotrope Strömungsfelder sind mit k- ε Modellen eigent-

lich keine guten Turbulenzergebnisse zu erwarten. Das k-ε-Modell wird hier aber trotzdem eingesetzt, weil es geringen Rechenaufwand erfordert und weil auch das chemische Reaktionsmodell eine wesentliche Vereinfachung der real ablaufenden Prozesse darstellt.

Als Alternative zum Standard k-ε Modell wurde in COM3D auch das fortgeschrittenere RNG k-ε Modell implementiert (RNG = renormalization group theory). Bei diesem Ansatz ergeben sich die Modellkonstanten aus der Theorie, und es kann auch auf kompressible Strömungen angewendet werden (Tab. 1).

2.2 Verbrennung

In der Massenerhaltungsgleichung für die Spezies α (Abb. 2) muß eine gemittelte Reaktionsrate $\tilde{\omega}_\alpha$ modelliert werden. Dies stellt ein Grundproblem der turbulenten Verbrennungsmodellierung dar, weil eine enge Interaktion zwischen Strömung, Turbulenz und chemischer Reaktionskinetik besteht und eine Entkopplung nicht möglich ist. Diese Wechselwirkung und die starke Nichtlinearität chemischer Reaktionen bezüglich der Temperatur bewirken, dass die mittlere zeitliche Reaktionsrate in einem Fluidvolumen nicht aus den mittleren Zustandsgrößen in diesem Volumen berechnet werden kann; d.h. $\tilde{\omega}(\alpha, T) \neq \tilde{\omega}(\tilde{\alpha}, \tilde{T})$.

Dieses sogenannte Schließungsproblem der reaktiven Strömungssimulation führt dazu, dass die Zahl der Unbekannten größer ist als die Zahl der Gleichungen.

	C_μ	C_1	C_2	C_k	C_ϵ	β
Standard k-ε	0.09	1.44	1.92	1.0	1.3	
RNG k-ε	0.0845	1.42	1.68	0.719	0.719	0.012

Tab.1: Konstanten des Standard- und RNG-k-ε Turbulenzmodells.

Ein möglicher Ausweg besteht darin, den Reaktionsquellterm durch Einführung einer Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion zu schließen (englisch: probability density function = PDF). Wenn diese statistische Funktion $F(T, f_i)$, die von der Temperatur T und den Massenbrüchen f_i abhängt ($i = 1 \dots N$), bekannt ist, läßt sich die mittlere Reaktionsrate wie in Abb. 2 unten ausdrücken.

Falls keine nennenswerten Energieverluste aus dem reagierenden Volumensegment auftreten, z.B. durch Abstrahlung oder Wärmeleitung an eine kalte Wand, kann die Temperatur T über die bekannte chemische Reaktion direkt aus den Massenbrüchen f_i bestimmt werden (fortgeschrittene Reaktion entspricht hoher Temperatur). Dann reduziert sich das Problem auf die Bestimmung der PDF für die Massenbrüche alleine. Diese adiabate Annahme kann in guter Näherung für schwach strahlende H_2 -Luft Flammen in großen Geometrien gemacht werden. Der erste Faktor $\tilde{\omega}$ in der Gleichung für das Verbrennungsmodell beschreibt die exakte Reaktionsrate bei der vorgegebenen Temperatur und den bekannten Spezieskonzentrationen. Im einfachsten Fall einer bimolekularen Reaktion $A + B \rightarrow AB$ wäre diese z.B. $\rho^2 \cdot k_0 \exp(-\Delta H/RT) \cdot f_A \cdot f_B$.

Es gibt zwei Möglichkeiten für die Bestimmung der PDF. Der theoretische eleganteste Weg ist die Lösung einer PDF-Transportgleichung, die sich aus den Erhaltungsgleichungen für die Spezies ableiten läßt. Dieser Weg erfordert aber sehr zeitaufwendige Monte-Carlo-Rechnungen.

Die zweite Möglichkeit besteht in empirischen Annahmen und Plausibilitätsbetrachtungen aus dem bekannten Verhalten turbulenter Mischungs- und Reaktionsprozesse unter bestimmten Bedingungen, wie z.B. in einfachen Strömungsgeometrien. Auch dieser Weg ist nicht einfach und mit Unsicherheiten in den abgeleiteten PDF's verbunden. Allerdings hat sich gezeigt, dass die wesentlichen Ergebnisse von turbulenten Verbrennungssimulationen nicht empfindlich von der Form der benutzten PDF abhängen.

Welche Vorteile bietet der statistische Ansatz? Von Bedeutung ist hierbei, dass sowohl in praktischen Anwendungsrechnungen als auch in Experimenten, meist nur zeitliche Mittelwerte wie z.B. Brennstoffverbrauch, Leistung oder Schadstoffbildung eines Verbrennungsprozesses interessieren bzw. gemessen werden. Die Details der turbulenzinduzierten Schwankungen dieser Größen in Raum und Zeit spielen meist keine bedeutende Rolle.

PDF-Ansätze sind also vor allem dann attraktiv, wenn es ausreicht, die auf vielen verschiedenen Längen- und Zeitskalen zufällig und chaotisch ablaufenden Wechselwirkungsprozesse zwischen Strömung, Turbulenz und chemischer Reaktion durch ihre Statistik zu beschreiben.

Aus dem in Abb. 2 angegebenen generellen PDF-Modell lassen sich einfache Spezialfälle ableiten. Wenn z.B. die chemische Reaktion sehr viel schneller abläuft als der Mischungsprozess, ist die Wahrscheinlichkeit Volumina mit teilweisem Ausbrand anzutreffen sehr gering. Ein Volumen enthält dann entweder unreaktiertes oder voll durchreagiertes Gas. In diesem Fall kann die PDF durch zwei Dirac δ -Funktionen dargestellt werden (Abb. 3) und die Gleichung für das Verbrennungsmodell vereinfacht sich zu

$$\tilde{\omega}_\alpha = -\frac{C_{\text{EBU}}}{\tau_{\text{tur}}} \cdot \tilde{f}_\alpha \left(1 - \frac{\tilde{f}_\alpha}{\tilde{f}_\alpha^0}\right) \quad (5)$$

Dieser Ansatz für die Reaktionsrate wird als Eddy-Break-Up

(EBU) Modell bezeichnet [2], das breite Anwendung in ingenieurmäßigen Rechnungen gefunden hat. Demnach wird die Reaktionsrate bei gegebenem Massenbruch \tilde{f}_α von der turbulenten Zeitkonstanten τ_{tur} bestimmt, die sich nach dem k- ε Turbulenzmodell zu $\tau_{\text{tur}} = k/\varepsilon$ ergibt. In dieser Näherung hat die chemische Reaktion keinen Einfluß auf die effektive Reaktionsgeschwindigkeit und Gl. 5 enthält demzufolge keine reaktionskinetischen Größen. Der langsamere Mischungsprozess, der im wesentlichen durch den Zerfall der Makrowirbel gesteuert wird, bestimmt die Reaktionsrate. Das rein mischungskontrollierte EBU-Modell verliert seine Gültigkeit, wenn die turbulente und die reaktionschemische Zeitskala ähnlich werden, oder auch in der Nähe von Wänden wo $k \rightarrow 0$, und $\tilde{\omega} \rightarrow \infty$ streben. Die Konstante C_{EBU} in Gl. 5 muß im allgemeinen aus Experimenten bestimmt werden. Für nichtreagierende Gas-komponenten α , wie z.B. Stickstoff oder Dampf, wird $C_{\text{EBU}} = 0$ gesetzt.

2.2.1 Erweitertes EBU-Modell

Erweiterungen des EBU-Modells wurden in [3] und [4] vorgeschlagen und begründet. Die Autoren zeigten, dass die mittlere Reaktionsrate merklich vom Verhältnis der turbulenten kinetischen Energie k zur laminaren Flammgeschwindigkeit S_L abhängt, wenn beide Größen die gleiche Größenordnung haben (wenn $k^{1/2} \approx S_L$ ist). Die modifizierte Formel für die mittlere Reaktionsrate lautet [4]:

$$\tilde{\omega}_\alpha = -\frac{C'_{\text{EBU}}}{\tau_{\text{tur}}} \left(1 + \frac{4.4}{1 + 3.2 k^{1/2}/S_L}\right) \tilde{f}_\alpha \left(1 - \frac{\tilde{f}_\alpha}{\tilde{f}_\alpha^0}\right) \quad (6)$$

Dieser Modellansatz berücksichtigt, dass bei langsamer turbulenter Durchmischung ein merklicher Beitrag zur Reaktionsrate durch die laminare Flammenfrontbewegung geleistet wird (erste Klammer in Gl. 6). Bei hochturbulenten Flammen ($k^{1/2} \gg S_L$) führt Gl. 6 auf das klassische EBU-Modell zurück. Dieses Modell stellt daher eine Erweiterung auf reaktive Strömungen mit geringeren Turbulenzintensitäten dar (Bereich 2 in Abb. 1). Dieser Ansatz wurde in COM3D implementiert und an verschiedenen Versuchen verifiziert.

2.2.2 Vorgegebenes β -PDF-Modell

Um Bereiche im Borghi-Diagramm abzudecken, die dem einfachen und erweiterten EBU-Modell nicht zugänglich sind, wird derzeit ein PDF-Modell entwickelt, das einen vorgegebenen analytischen Funktionstyp, sogenannte β -Funktionen, benutzt, um PDF-Entwicklungen, die in Experimenten gemessen wurden, zu approximieren und mit wenigen Parametern auf anderen Strömungsfelder zu extrapolieren. Es hat sich erwiesen, dass diese β -Funktionen von ihrer Form her sehr geeignet sind, die PDF's, die sich an verschiedenen Orten und zu verschiedenen Zeiten in reagierenden Strömungen ausbilden, zu simulieren.

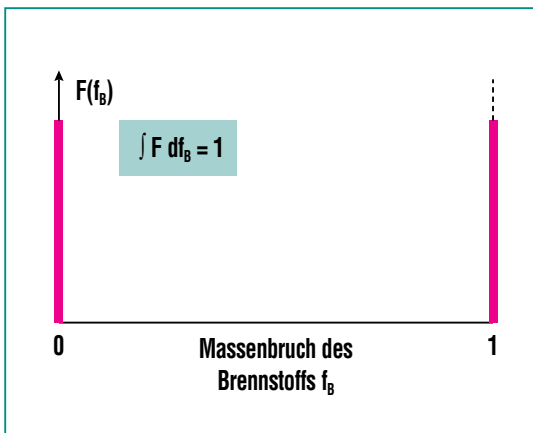


Abb. 3: Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für Brennstoff im Grenzfall unendlich schneller Chemie.

Die Arbeiten im IKET beziehen sich zunächst auf ein β -PDF-Modell für zwei Komponenten. Dieses Modell erlaubt vom Ansatz her sowohl die Beschreibung von mischungs- als auch reaktionskontrollierten turbulenten Flammen und sollte daher einen weiten Bereich von leicht gewellten bis hochturbulenten Flammen abdecken (Bereich 2 – 5 im Borghi-Diagramm). Die analytischen Formeln für β -PDF's lauten:

$$F(f) = \frac{\Gamma(\beta_1 + \beta_2)}{\Gamma(\beta_1)\Gamma(\beta_2)} f^{\beta_1-1} (1-f)^{\beta_2-1}, \quad (7)$$

wobei die Γ -Funktion definiert ist als

$$\Gamma(\beta) = \int_0^\infty x^{\beta-1} e^{-x} dx. \quad (8)$$

Beispiele für β -PDF's entsprechend Gl. (7) sind in Abb. 4 dargestellt. Für $\beta_1 = \beta_2 \rightarrow 0$ nähern sich die β -Funktionen den δ -Funktionen aus Abb. 3, was weitgehend entmischten Systemen entspricht. Für $\beta_1 = \beta_2 = 1$ ergibt sich eine statistische Gleichverteilung aller möglichen Reaktionsfortschritte (d.h. Anteil an verbranntem Gas) und bei großen β_1, β_2 -Werten erhält man eine Gaußverteilung. Mit $\beta_1 \neq \beta_2$ kann die Gaußverteilung nach links oder rechts verschoben werden.

Damit dieser funktionale Ansatz zu physikalisch relevanten Ergebnissen führt, müssen die zwei freien Parameter β_1 und β_2 mit Größen des Strömungsfeldes verknüpft werden. Man kann zeigen, dass eine physikalische sinnvolle Modellierung mit β -Funktionen z.B. mit der folgenden Definition möglich ist:

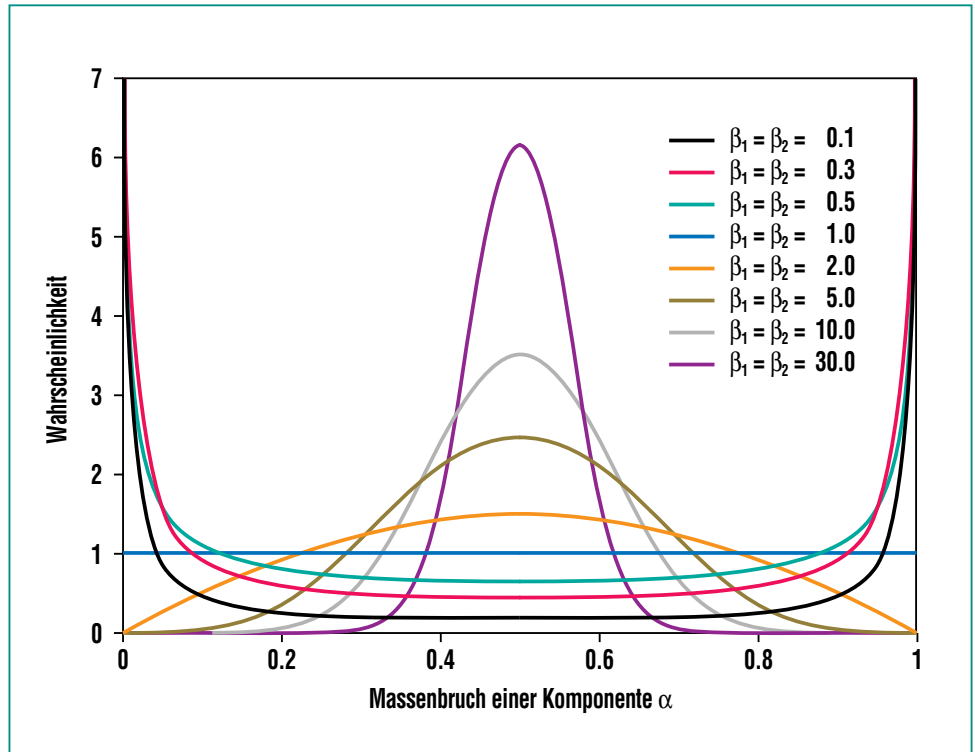


Abb. 4: Beispiele für β -Funktionen, die zur statistischen Beschreibung von Reaktionszuständen in PDF-Modellen eingesetzt werden (Gleichung 7).

$$\beta_\alpha = f_\alpha \left(\frac{f_\alpha (1-f_\alpha)}{\tilde{f}_\alpha^{n_2^2}} - 1 \right), \quad \alpha=1,2 \quad (9)$$

Gl. (9) verknüpft die mathematischen Parameter der β -Funktion β_1 und β_2 mit den Mittelwerten f_α und der Varianz $\tilde{f}_\alpha^{n_2^2}$ der Reaktionsfortschrittsvariablen f_1 , bzw. f_2 . Die Varianz in den Fortschrittsvariablen α ist ein Maß für die Turbulenzintensität in der Strömung. Hohe Turbulenz bewirkt gute Durchmischung und eine kleine Varianz bei den Reaktionszuständen, d.h. überall ähnlichen Brennstoffabbau.

Weiterführende Theorien zeigen, daß auch die Varianz $\tilde{f}_\alpha^{n_2^2}$ einer allgemein gültigen Transportgleichung für skalare Größen in ei-

nem Strömungsfeld genügen muß. Diese hier nicht angegebene Gleichung ergibt zusammen mit den oben beschriebenen Erhaltungs- und Modellgleichungen für Masse, Energie, Impuls, Turbulenz und chemische Reaktion ein geschlossenes Gleichungssystem, das numerisch gelöst werden kann.

2.3 Thermodynamik

Im COM3D-Programm wird die ideale Gasgleichung zusammen mit hochgenauen Fitfunktionen für die Wärmekapazitäten und Enthalpien der Spezies benutzt [5]. Derzeit sind vier Komponenten berücksichtigt: H_2 , O_2 , H_2O und N_2 . Die thermodynamischen Daten wurden aus den JANAF-Tabellen entnommen.

2.4 Numerische Details und Zusatzprogramme

Eine Übersicht zu den physikalischen, numerischen und grafischen Modellen im COM3D-Programm wird in Abb. 5 gegeben.

Die numerische Simulation turbulenter Strömungen stellt besonders hohe Anforderungen an den numerischen Löser, weil Geschwindigkeitsgradienten mit Turbulenzerzeugung verbunden sind (2. Term linke Seite von k und ε Gleichung in Abb. 2). Der Löser darf deshalb einerseits keine nicht-physikalischen Oszillationen, d.h. Turbulenz einführen, und andererseits keine zu starke numerische Glättung der Geschwindigkeitsgradienten bewirken.

In der Entwicklungsphase des COM3D-Programms wurden deshalb verschiedene numerische Lösungsalgorithmen anhand typischer Testprobleme untersucht. Danach sind sog. TVD-Verfahren (Total Variation Diminishing) am besten für turbulente

Verbrennungen mit einem großen Bereich von unterschiedlichen Geschwindigkeiten geeignet. Sie besitzen ein hohes Auflösungsvermögen für Stoßfronten und Kontaktflächen (beides Dichtesprünge), sind effektiv zu implementieren, und können weitgehend vektorisiert werden. Neben dem TVD-Löser stehen auch weitere Lösungsverfahren im COM3D-Code zur Verfügung (Abb. 5). Alle Löser sind für kubischen Rechengitter geschrieben, weil diese kurze Rechenzeiten pro Zeitschritt erfordern und keine numerischen Anisotropien in die berechneten Strömungsfelder einbringen.

Bei komplexen 3D-Problemen ist die visuelle Eingabe und Ausgabe eine absolute Notwendigkeit. Es ist z.B. praktisch unmöglich die Geometrie und die Anfangsbedingungen für das Reaktorproblem in Abschnitt 5 mit ca. 2.000.000 Rechenzellen Punkt für Punkt einzugeben. Das GIN-Programm gestattet dem Benutzer komplexe Geometrien (z.B. Abb. 17) durch Kombination von

geometrischen Grundformen wie Platte, Quader, Kugel, Zylinder oder Ellipsoid in beliebiger Weise aufzubauen. Jeder so definierte Raumbereich kann als Festkörper oder Gasvolumen spezifiziert werden. Die Festkörper insgesamt definieren die geometrischen Randbedingungen für die Lösung der gasdynamischen Gleichungen in den Gasvolumina. Das GIN-Programm erzeugt entweder einen Binärfiler oder einen File für die graphische Verarbeitung der geometrischen Daten mittels einer speziellen Geometriedarstellungssprache. Beide Files können vom COM3D Code interpretiert werden.

Auch die Kontrolle, Interpretation und Repräsentation von 3D-Strömungsrechnungen erfordert eigene grafische Methoden. Da die offen oder kommerziell verfügbaren Grafiktools den speziellen COM3D-Anforderungen nur schlecht genügen, wurde ein Verbund von eigenen Grafikprogrammen entwickelt.

Die COM3D Ausgabe besteht aus einer Realzeit-Grafik und Dateien für Post-Processing. Die On-line Darstellung erlaubt die ständige Kontrolle einer Simulationsrechnung was für Test- und Produktionsläufe sehr wichtig ist. Es wurde besonderer Wert darauf gelegt, dass die On-line Grafikfunktion die Programmausführung nicht merklich verlangsamt.

Dazu wurden ein Programmkomplex COM3D-G3_SERV3-G3 nach dem Client-Server-Prinzip entwickelt, wobei der Teil G3-SERV3 als Server auf Anfragen von den beiden anderen Teilen

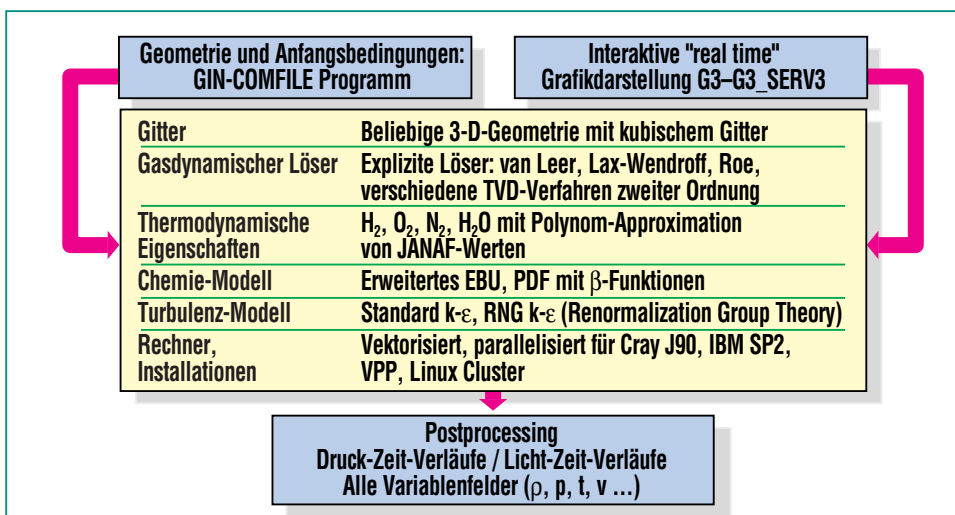


Abb. 5: Physikalische, numerische und grafische Modelle im COM3D Programm.

COM3D (für Ausführung) und G3 (für Graphik) wartet und reagiert. Jeder Programmteil kann auf einem separaten Rechner innerhalb eines heterogenen Netzwerkes laufen, COM3D und G3-SERV3 z.B. auf einem Hochleistungsrechner und G3 auf einer lokalen Workstation. Dadurch belastet der Grafikprozess die Rechenausführung nur für die sehr kurze Zeit der Datenübertragung. Das Grafikmodul G3 erlaubt "on-line" Darstellung aller berechneten Variablenfelder wie Druck, Dichte, Geschwindigkeiten usw. in drei wählbaren Raumflächen (x-y, x-z, y-z) mittels einer Farbpalette. Die berechneten Daten können auch weiterverarbeitet werden, z.B. für ein numerisches Schlierenbild ($\text{grad } \rho$) wie in Abb. 15.

Für 3D-Post-Processing können die Ausgabedaten mit verfügbaren 3D-Visualisierungsprogrammen wie AVS oder Open DX weiterverarbeitet werden.

Die derzeitige COM3D-Version ist für den Einsatz auf massiv parallelen Rechnern vorgesehen und basiert auf MPI (Message Passing Interface) Routinen. Mit Hilfe von speziellen C++-Routinen wird eine blockweise Berechnung vorgenommen. KeLP-Module unterstützen die Datenzerlegung und Management der irregulären Kommunikation. Testläufe mit bis zu 60 Prozessoren auf einer SP2-Maschine ergaben eine fast lineare Skalierung. Für die hier interessierenden großen Zellenzahlen werden weniger als 10 % der Prozessorleistungen für Kommunikation verbraucht.

Alle Programmteile des COM3D-Systems sind in C oder C++ ge-

schrieben, wobei der graphische Teil auf Standard X11-Bibliotheken zurückgreift, die auf fast allen UNIX-Rechnern zur Verfügung stehen. Bisher wurde die Parallelversion von COM3D auf den folgenden Maschinen und Betriebssystemen implementiert:

- IBM SP2, AIX 4.2
- VPP, Unix V4.1
- Intel Pentium, Linux und Free BSD.

Die Implementierung auf einer Cray T3E ist in Vorbereitung. Eine Vektorversion von COM3D wurde für das System Cray J90 Unicos 9.0 entwickelt und implementiert.

3. Versuche zur turbulenten Strömung und Verbrennung

Für die Verifikation der numerischen und physikalischen Model-

le des COM3D-Programms werden experimentelle Daten in einem möglichst weiten Bereich von Gemischzusammensetzungen, geometrischen Konfigurationen und Abmessungen benötigt. Um die verschiedenen Modelle möglichst unabhängig voneinander testen zu können, wurden transiente Strömungsversuche zunächst ohne und dann mit Verbrennung gemacht. Da die geometrische Skala einen wesentlichen Einfluß auf die Energetik von Verbrennungsprozessen haben kann, wurden die Verbrennungsversuche auf mittlerer und großer Längenskala durchgeführt (12 m bzw. 60 m).

3.1 FZK 12 m-Rohr

Die Rohrversuchsanlage des FZK ist in Abb. 6 dargestellt. Mit ihrer Hilfe wurden zwei verschiedene Experimentreihen durchgeführt.



Abb. 6: FZK-Versuchsanlage zur Untersuchung von turbulenten Strömungs- und Verbrennungsprozessen. Zur Turbulenzerzeugung können ringförmige Strömungshindernisse mit unterschiedlichem Versperungsgrad (BR = 30 ... 90 %) im Rohr eingebaut werden.

- Experimente zur Turbulenzerzeugung und -dissipation in Luft in einer teilversperrten Geometrie, und
- Experimente zur turbulenten Verbrennung von mageren H_2 -

Luft-Gemischen in teilversperrten Geometrien.

Ziel war es zuerst die Modelle für Turbulenz allein und dann die gekoppelten Modelle für Turbulenz und chemische Reaktion zu untersuchen.

3.1.1 Transiente Turbulenzversuche

Zur Erzeugung von transienten Strömungsfeldern mit Turbulenz wurde das 12 m-Rohr als Stoßrohr betrieben, bestehend aus einem 9 m langen Niederdruckteil und einem 3 m langen Hochdruckteil (Abb. 7, linker Teil). Der Niederdruckteil enthielt Luft bei 1 bar. In ihm befand sich eine 6 m lange Hindernisstrecke aus 12 Ringen, die 30 % des Rohrquerschnitts versperrten. Der Hochdruckteil wurde mit He gefüllt. Bei etwa 5 bar versagt die Berstmembran zwischen Niederdruck- und Hochdruckteil und eine Stoßwelle läuft in die Hindernisstrecke wo sie Amplitude und Geschwindigkeit durch Turbulenzerzeugung und Reflektionen verliert. Das transiente Strömungsfeld in diesem Versuch ähnelt den Strömungsverhältnissen, die sich vor einer schnellen turbulenten Flamme ausbilden. Die gemessenen Drucksignale entlang der Rohrwand (Abb. 7) können dann mit Simulationsrechnungen verglichen werden und erlauben eine separate Überprüfung der Turbulenzmodelle unter inerten Bedingungen, ohne Überlagerung durch einen Verbrennungsprozess.

3.1.2 Turbulente Verbrennung

Die Versuchsgeometrie für turbulente Verbrennungen ist in Abb. 8 schematisch dargestellt. Sie besteht aus dem beidseitig geschlossenen Versuchsrohr, das einen inneren Durchmesser von 35 cm hat, und einer eingebauten Hindernisstrecke aus ringförmigen Blenden. Die eingefüllte H_2 -

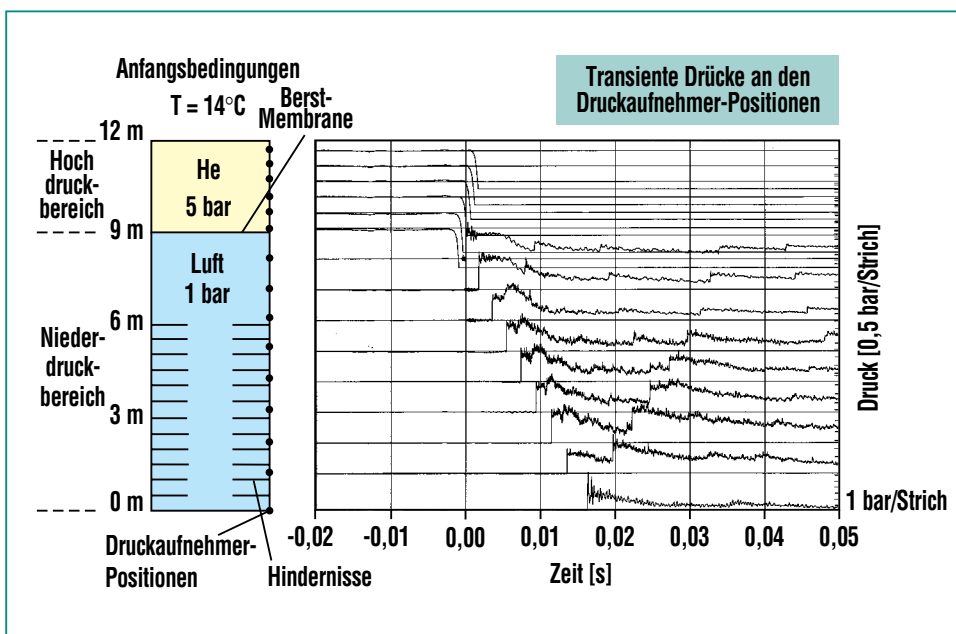


Abb. 7: Stoßrohrversuch zur Turbulenzerzeugung und -dissipation im FZK 12-m-Rohr mit einer teilweise versperrten Geometrie. Nach Versagen der Berstmembran läuft eine Stoßwelle in die Hindernisstrecke aus ringförmigen Blenden. Die gemessenen Drucksignale enthalten Information über das entstehende Turbulenzfeld.

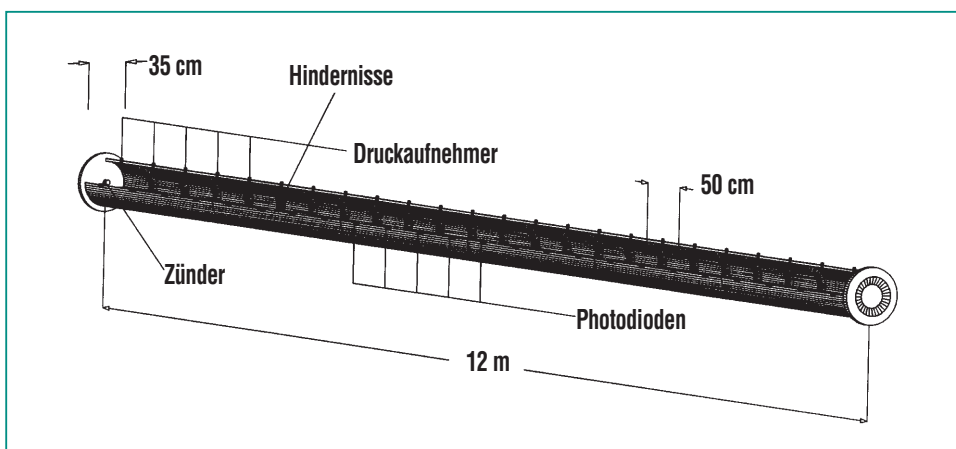


Abb. 8: Versuchsgeometrie zur Untersuchung von turbulenten H_2 -Luft-Verbrennungen im FZK 12-m-Rohr.

Luft-Mischung wird an einem Rohrende mit einer Glühkerze gezündet. Von dort breitet sich zunächst eine langsame quasi-laminare Flamme aus, die aber durch Turbulenzentwicklung an den Hindernissen spontan auf hohe Geschwindigkeiten beschleunigen kann. Die Versuchsinstrumentierung umfaßt Druckaufnehmer, Infrarot-Photodioden und Ionisationssonden.

Die beiden wesentlichen Versuchsparameter sind die Wasserdampfkonzentration für die chemische Reaktion und der Versperrungsgrad der Strömungshindernisse für die Turbulenz. Der Versperrungsgrad (blockage ratio) wird definiert als $BR = 1 - d^2/D^2$, wobei d der Öffnungsdurchmesser der ringförmigen Hindernisse ist und D der innere Rohrdurchmesser. Der Versperrungsgrad wurde durch Einsatz verschiedener Ringsätze variiert. Der Abstand zwischen zwei Hindernissen war in allen Versuchen 50 cm. Dieser Wert wurde gewählt, um den selbstverstärkenden Effekt der Turbulenzerzeugung möglichst effizient mit jedem Ring ausnutzen zu können. Bei wesentlich größerem Abstand fällt die Flammengeschwindigkeit ab, ehe das nächste Hindernis erreicht ist, bei deutlich kleineren Werten brennt das Gas radial zwischen zwei Hindernissen zu langsam aus, im Vergleich zum unversperrten Kernbereich entlang der Rohrachse. Die Versuche wurden mit $BR = 0.3, 0.6, 0.75$ und 0.90 sowie H_2 -Konzentrationen zwischen 10 und 20 % durchgeführt. Mit diesen Versuchsparametern kann das ganze theoretische mögliche Ver-

brennungsspektrum abgedeckt werden, von langsamen Deflagrationen bis hin zu stabilen Detonationen.

Vor jedem Versuch wurde das Rohr auf einen Restdruck < 1 mbar evakuiert und dann mit einer H_2 -Luft Mischung auf 1 bar aufgefüllt. (Einige Versuche wurden auch im Bereich $0.5 - 3$ bar durchgeführt). Die gewünschte H_2 -Konzentration wurde mit geeichten Massendurchflussmessern eingestellt. Nach dem Füllvorgang wurde die H_2 -Konzentration im Rohr mit zwei anderen unabhängigen Methoden überprüft. Die Genauigkeit lag bei ± 0.1 Vol. % H_2 . Beispiele für Messergebnisse wurden schon früher dargestellt [6]. Ein neueres Ergebnis wird in Abb. 12 mit COM3D Rechnungen verglichen.

3.2 RUT-Anlage

Großversuche sind unverzichtbar, da turbulente Verbrennungen mit zunehmender geometrischer Dimension energetischer und unter größerer Lastentwicklung ablaufen. Die Ursache liegt in dem positiven Rückkopplungsmechanismus zwischen Turbulenzer-

zeugung und Verbrennungsrate. In einer größeren teilversperrten Geometrie besteht mehr Weg und Zeit für die turbulenzgetriebene Flammenbeschleunigung. Es werden dadurch bei hinreichender Gasreaktivität höhere Geschwindigkeiten und Drücke erreicht. Auch die Turbulenzintensität wächst mit der geometrischen Skala, weil die turbulente Reynolds-Zahl $Re_t = u'L_t/\nu$ mit dem turbulenten Makrolängenmaß L_t zunimmt, das wiederum mit der charakteristischen Dimension der Strömungshindernisse wächst. Erst nachdem das Rechenmodell an Großversuchen verifiziert wurde, kann es für Vorhersagen bei ähnlich großen Geometrien eingesetzt werden.

In der RUT-Anlage wurden verschiedene Versuchsserien in reaktortypischer Dimension durchgeführt, die für LWR-Containments typisch sind. Abb. 9 zeigt eine Prinzipskizze der Versuchsanordnung. Der linke, 34 m lange Kanal war mit großen Beton-Hindernissen ausgestattet und über eine Öffnung mit einer großen Kavität verbunden (ca. 150 m^3 Volumen). Die Kavität und der rechte 2. Kanal enthielten keine

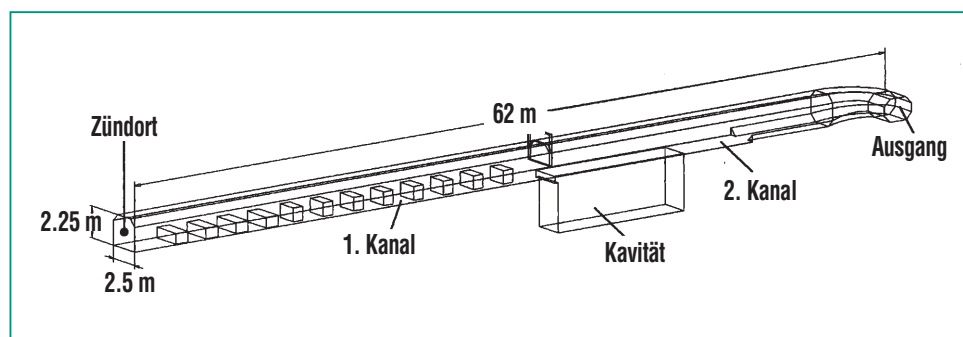


Abb. 9: Prinzipskizze der RUT-Anlage zur Durchführung von großskaligen Verbrennungsversuchen mit H_2 -Luft und H_2 -Luft-Dampf Gemischen. Gesamtlänge 62 m, Gesamtvolumen 480 m^3 .

Strömungshindernisse mehr. Das Gesamtvolumen betrug 480 m³. Nach der Füllung wurde die homogene Gasmischung am linken Ende des 1. Kanals mit einem schwachen Funken gezündet. Im Auftrag von FZK wurden Verbrennungsversuche mit verschiedenen Versperrungsgraden, verschiedenen H₂-Luft [7] und H₂-Luft-Dampf Gemischen [8, 9] durchgeführt. Der Ausgangsdruck betrug 1 bar und die Anfangstemperatur ≈ 10 °C bei H₂-Luft- und ≈ 100 °C bei H₂-Luft-Dampfversuchen.

Die RUT-Versuche, die für die Codevalidierung genauer ausgewertet wurden, sind in Tab. 2 aufgeführt. Damit sind detaillierte experimentelle Daten zu allen hier interessierenden Verbrennungsformen auf großer Skala verfügbar. Die Versuche RUT 13, 17, 21, 23 mit dem Versperrungsgraden BR = 0, 30 und 60 % erlauben speziell den Einfluß der Hindernisgeometrie zu untersuchen.

Die STM-Versuchsserie mit verschiedenen H₂-Luft-Dampf Mischungen ermöglicht vorallem den Einfluß der erhöhten Temperatur und der verschiedenen H₂/Dampf-Gehalte über einen weiten Bereich mit den theoretischen Modellen zu vergleichen. Diese Versuche decken auch die verschiedenen Verbrennungsbereiche ab. STM2, STM6, und STM7 ergaben schnelle turbulente Flammen mit Maximalgeschwindigkeiten von 680 bis 830 m/s, während beim Versuch STM9 nur maximal 250 m/s auftraten. Die RUT Experimente zeigten, dass im Vergleich zu den entsprechenden Versuchen auf mittlerer Skala eindeutig höhere Flammengeschwindigkeiten und größere dynamische Drucklasten auftreten.

Insgesamt haben die Testserien im FZK-Rohr (12 m Länge) und in der RUT-Anlage (60 m) eine neue, sehr ausführliche Datenbasis für die Verifikation von turbulenten Verbrennungsmodellen ergeben.

4. Programmverifikation

Die verschiedenen physikalischen und numerischen Einzelmodelle des COM3D-Programms wurden schrittweise, möglichst weitgehend entkoppelt von anderen Teilmodellen, an bekannten numerischen und experimentellen Ergebnissen überprüft.

4.1 Gas- und Thermodynamik

Die verwendeten thermodynamischen Daten und numerischen Lösungsverfahren wurden anhand eines detailliert untersuchten Standardproblems getestet. Es handelt sich dabei um eine stationäre Überschallströmung (Mach 3), die in einem 2D-Kanal auf eine Stufe trifft, wobei komplexe Strömungsmuster und bestimmte wohlbekannte Variablenwerte auftreten (Abb. 10). Die mit COM3D berechneten Werte für den Staudruck an der Stufe, für die Lage und Krümmung der linken Stoßfront, für die Lage des oberen Triplepunkts und der dort entspringenden Scherschicht, sowie das berechnete Stoßwellensystem stromabwärts, stimmen gut mit den bekannten Literaturwerten überein.

Abb. 10 zeigt außerdem, dass das hier verwendete numerische Verfahren (TVD) auch bei relativ grober Gitterauflösung noch eine stabile und gut definierte Lösung für das Strömungsfeld liefert.

Als Test zur Thermodynamik der Verbrennung wurde eine vollständige adiabate Verbrennung bei konstantem Volumen mit COM3D berechnet und mit den Ergebnis-

Versuch	Mittlere H ₂ -Konz. [Vol.% trocken]	Versperrungsgrad	Mittlere Dampfkonz. [Vol.%]	Max. Flammengeschwindigkeit [m/s]
RUT 13	11,0	0,3	–	210
RUT 17	11,0	0,3	–	440
RUT 21	12,5	0,6	–	650
RUT 23	11,2	0,6	–	340
STM 2	14,7	0,3	14,7	680
STM 7	17,5	0,3	25,7	830
STM 6	29,6	0,3	45,0	780
STM 9	10,1	0,3	6,6	250

Tab. 2: Parameter der großskaligen Verbrennungsversuche in der RUT-Anlage, die zur Verifikation von turbulenten Verbrennungsmodellen im Detail ausgewertet wurden.

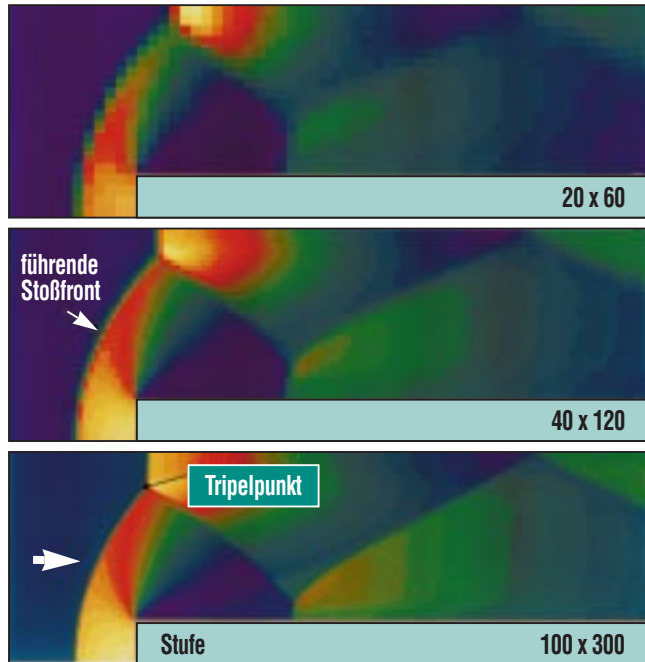


Abb. 10: Testproblem zur Verifikation von Fluidodynamik und Numerik des COM3D-Programms: Stationäre Anströmung einer Stufe in einem 2-D-Kanal mit Mach 3, von links nach rechts, Stickstoff bei 1 bar, 298 K. Gitterdimensionen (von oben nach unten) 20 x 60, 40 x 120, bzw. 100 x 300 Zellen. Die COM3D Ergebnisse für das berechnete Strömungsfeld stimmen sehr gut mit der bekannten numerischen Lösung überein. Auch bei relativ grober Gitterauflösung liefert das verwendete TVD-Verfahren stabile Lösungen.

sen des Standardprogramms STANJAN [10] verglichen. Der Testfall bezieht sich auf eine H_2 -Luft-Mischung mit 15 Vol.% Wasserstoff. Tab. 3 zeigt eine gute Übereinstimmung der berechneten Zustandsdaten. Die um 4 % geringere Temperatur von COM3D kann als Teilkompensation für die in COM3D vernachlässigten Wärmeverluste angesehen werden.

4.2 Turbulenz

Das unter 3.1.1 beschriebene Experiment zur transienten Turbu-

lenzerzeugung in einer versperrten Geometrie wurde mit drei verschiedenen Ansätzen simuliert:

- kein Turbulenzmodell, reine Euler-Gleichungen ohne molekulare Transporteffekte,
- $k-\epsilon$ Turbulenzmodell, und
- RNG $k-\epsilon$ Turbulenzmodell.

Für die Rechnungen wurde ein Gitter aus etwa 390.000 kubischen Rechenzellen mit 1 cm Kantenlänge benutzt.

	COM3D	STANJAN
Druck (Pa)	$5,42 \times 10^5$	$5,66 \times 10^5$
Temperatur (K)	1725	1799
Dichte (kg/m^3)	1,0144	1,0147

Tab. 3: Vergleich von COM3D- und STANJAN-Ergebnissen für eine adiabate, isochore Verbrennung einer 15 Vol.% H_2 -Luft-Mischung.

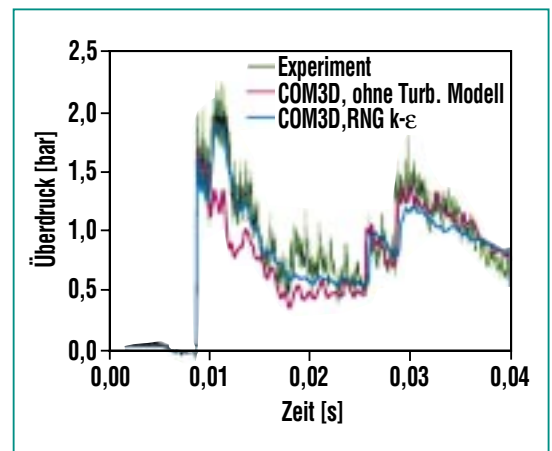


Abb. 11: COM3D-Simulation des Stoßrohrversuchs zur transienten Turbulenzerzeugung (Abb. 7) ohne Turbulenzmodell und mit RNG $k-\epsilon$ Modell. Mit Standard $k-\epsilon$ und RNG $k-\epsilon$ ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Druckdaten.

Abb. 11 zeigt einen Vergleich zwischen derart berechneten und gemessenen Druckdaten. Ohne Turbulenzmodell ist keine befriedigende Übereinstimmung zu erreichen. Das RNG/ $k-\epsilon$ -Modell liefert dagegen recht gute Ergebnisse. Die Rechnung mit dem Standard $k-\epsilon$ -Modell ergab nur geringe Unterschiede zum RNG-Modell und wurde deshalb in Abb. 11 nicht zusätzlich dargestellt. Auch der Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Ausbreitungsgeschwindigkeiten zeigte gute Übereinstimmung.

Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass beide Turbulenzmodelle für die Simulation der hier interessierenden schnellen transienten Gasströmungen in komplexen Geometrien eingesetzt werden können.

4.3 Turbulente Verbrennung

Das COM3D-Modell für turbulente Verbrennung wurde an den oben beschriebenen Versuchen auf mittlerer und großer Skala überprüft (FZK-Rohr und RUT-Anlage).

Versperrungs- grad	Wasserstoffkonzentration (Vol.%)			
	20	15	12	11
0,30	6,0	6,0	4,9	5,5
0,45	6,0	6,0	5,0	5,5
0,60	6,0	6,0	–	–
0,90	–	8,0	7,0	7,0

Tab. 4: Werte für C'_{EBU} aus turbulenten Verbrennungsversuchen mit H_2 -Luft Gemischen im FZK-12-m Rohr.

4.3.1 FZK-Rohrversuche

Das erweiterte EBU-Modell für die Reaktionsrate (Gl. 14) enthält die a priori nicht bekannte Konstante C'_{EBU} . Für eine Reihe von Rohrversuchen mit verschiedenen Versperrungsgraden und H_2 -Konzentrationen wurde deshalb C'_{EBU} so bestimmt, dass optimale Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Drücken und Flammengeschwindigkeiten erreicht wurde (Tab. 4). Es ist bemerkenswert, dass alle Versuche durch sehr ähnliche C'_{EBU} -Werte gut reproduziert werden können ($C'_{\text{EBU}} = 5 - 8$). Das gilt sowohl für die anfängliche Beschleunigungsphase kurz nach der Zündung (0 – 0.01 s) als auch für Details der späteren Verbrennung, wie z.B. Geschwindigkeiten und Drücke der einlaufenden, reflektierten und transversal laufenden Welle [11]. Ein Beispiel für die gute Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ist in Abb. 12 für einen Fall mit 15 Vol.% H_2 in Luft, 30 % Versperrungsgrad, und $C'_{\text{EBU}} = 6$ gegeben.

Das erweiterte EBU-Modell erlaubt Simulation von turbulenten H_2 -Verbrennungen über einen weiten Bereich von maximalen Flammengeschwindigkeiten (200 – 1200 m/s), Versperrungsgraden (30 – 90 %) und H_2 -Konzentrationen (11 – 20 Vol.%).

Alle Versuche, instabil brennende Mischungen, wie z.B. 10 % H_2 mit 30 % BR zu simulieren, schlugen fehl. Diese energetisch relativ schwachen Gemische zeigen nach einer ersten Beschleunigungsphase lokale Löschvorgänge oder sogar globales, völliges

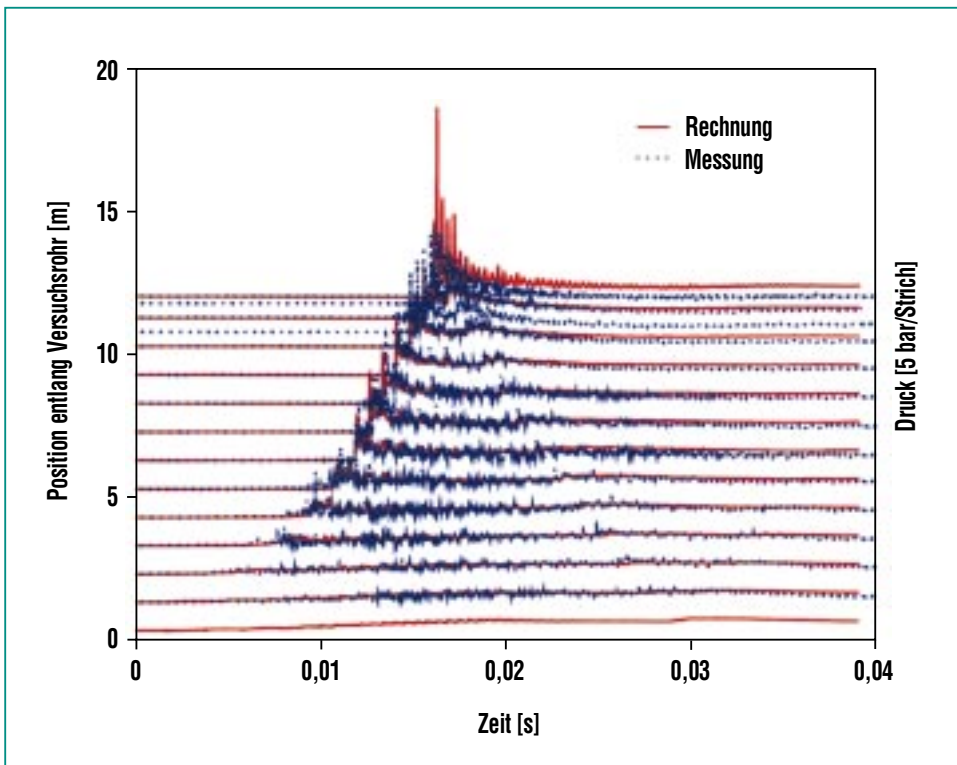


Abb. 12: Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Drücken für einen Versuch mit 15 % H_2 in Luft im FZK-Rohr, Hindernisse mit 30 % Versperrungsgrad. Die Druckdaten sind längs der Ordinate entsprechend der Sensorposition im Rohr (0 – 12 m) angeordnet. Man erkennt so die einlaufende Flammenfront (links) und die reflektierte Druckwelle (rechts), blau = Messung, rot = Rechnung, $C'_{\text{EBU}} = 6$.

Erlöschen der Verbrennung, wenn die Turbulenz hinreichend hohe Werte erreicht hat. Da das EBU-Modell keine Löschvorgänge berücksichtigt, kann dieses langsame, instabile Verbrennungsregime nicht mit diesem Ansatz abgedeckt werden.

Die beschriebenen Rechnungen für die Rohrversuche erlauben den Gültigkeitsbereich des erweiterten EBU-Modells im eingangs vorgestellten Borghi-Diagramm mit Hilfe von rechnerisch ermittelten turbulenten Reynolds-Zahlen ($Re_t = u' L_t / \nu$) und Damköhler-Zahlen (τ_{tur} / τ_{chem}) abzuschätzen. Es ergeben sich die Wertebereiche $10^2 < Re_t < 10^6$ und etwa $10^1 < Da < 10^3$, die in Abb. 13 blau dargestellt sind. Dieser Parameterbereich deckt einen nennenswerten Teil der für verbrennungstechnische Anwendungen interessierenden turbulenten Verbrennungsregimes ab. In Abb. 13 ist dieser Bereich rot dargestellt. Die vom erweiterten EBU-Modell nicht erfassten Bereiche mit $Da < 10^1$ sollen mit dem oben beschriebenen PDF-Ansatz modelliert werden, der derzeit entwickelt wird.

4.3.2 RUT-Anlage

Das erweiterte EBU-Modell mit den C'_{EBU} Werten aus Tab. 3 wurde auf die Großversuche in der RUT-Anlage angewendet, um die geometrische Skalierfähigkeit des Modells zu testen.

Die Versuchsgeometrie wurde mit relativ hohem Detaillierungsgrad abgebildet, unter Verwendung von kubischen Rechenzellen mit 12,5 cm Kantenlänge (insgesamt $\approx 1.100.000$ Rechenzellen). Für die numerische Simulati-

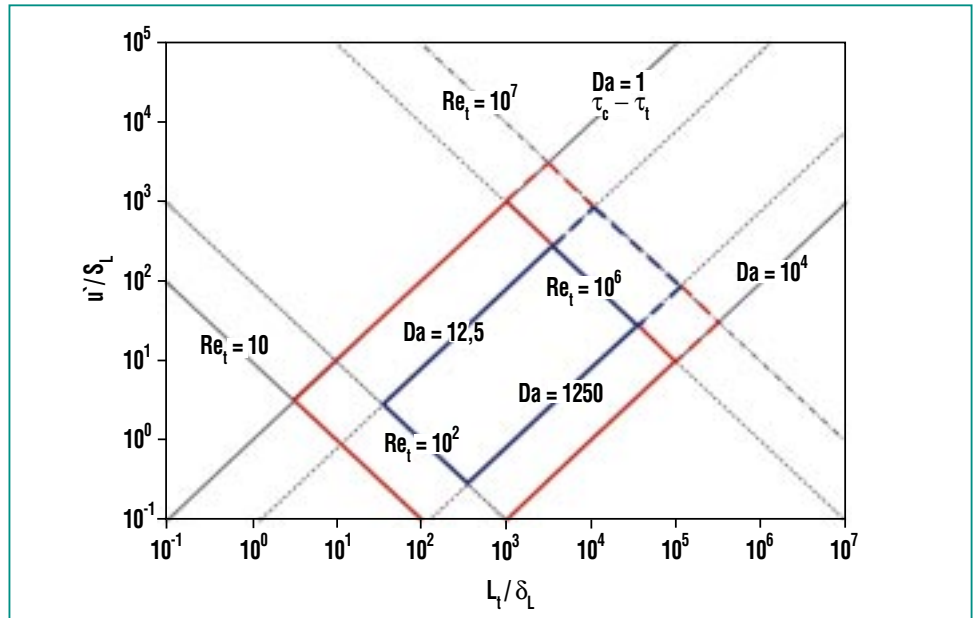


Abb. 13: Aus Verifikationsrechnungen mit COM3D abgeleiteter Gültigkeitsbereich des erweiterten EBU-Reaktionsmodells (blau) und der Bereich von allgemeinem Interesse für die Simulation von industriellen Vormischflammen (rot). Der Verifikations- und Anwendungsbereich für Verbrennungen im Reaktor-Containment ist gestrichelt dargestellt.

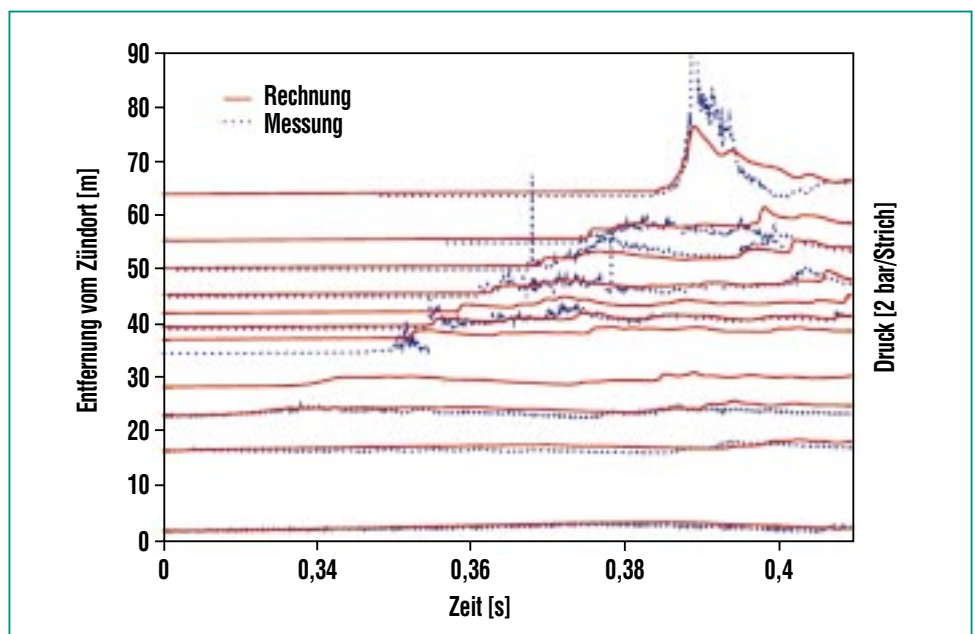


Abb. 14: COM3D-Simulation für Großversuch RUT-STH6 mit stöchiometrischem H_2 -Luft + 45 % Dampf-Gemisch, $p_0 = 1$ bar, $T_0 \approx 100$ °C. Die Rechnung reproduziert die gemessene Flammenbeschleunigung und die entstehenden Drücke hinreichend genau. Das COM3D-Modell enthielt keine freien Modellparameter mehr.

on wurden anstelle der leicht ortsabhängigen Versuchsdaten für Temperatur, Wasserstoff- und Dampfkonzentration ortsunabhängige Mittelwerte eingesetzt.

Abb. 14 zeigt als Beispiel den Vergleich von Rechenergebnissen und Messdaten für Versuch STH6 (45 % Dampf in stöchiometrischer H_2 -Luft Mischung). Die Übereinstimmung ist sehr befriedigend, wenn man berücksichtigt, dass die Rechnung keine freien Parameter enthielt, die man hätte anpassen können (C'_{EBU} entsprechend Tab. 4). Sowohl die an-

fangs langsame Deflagration über die ersten 20 bis 30 m, als auch die anschließende Flammenbeschleunigung und die damit verbundene Druckentwicklung werden gut wiedergegeben. (Für einige Positionen längs der Teststrecke liegen nur berechnete Daten vor.)

Durch die erfolgreichen RUT-Simulationen konnte der Gültigkeitsbereich des erweiterten EBU-Modell gegenüber den Rohrversuchen um etwa eine Größenordnung erweitert werden (gestrichelt dargestellte Linien in Abb. 13).

5. Programm-anwendungen

Das breite Spektrum möglicher Anwendungen des COM3D-Programms wird im folgenden an drei Beispielen gezeigt. Sie betreffen eine Grundlagenuntersuchung, einen H_2 -Mischungsprozess auf kleiner Skala und eine turbulente H_2 -Verbrennung auf großer Reaktorskala im Containment eines Druckwasserreaktors.

5.1 Wechselwirkung zwischen Flamme und Turbulenz

Die grundlegende Frage bei der Simulation von turbulenten Verbrennungen betrifft die Wechselwirkungs-Mechanismen zwischen dem Turbulenzfeld und der chemischen Reaktion in der Flammenzone. Dazu wurden in Zusammenarbeit mit dem Kurchatov Institut Moskau Experimente mit einem Einzelwirbel gemacht [12] und mit COM3D simuliert (Abb. 15).

Abb. 15 zeigt ein numerisches Schlierenbild, d.h. den Gradienten der berechneten Dichte zu zwei verschiedenen Zeitpunkten. In dem Versuch brennt eine quasi-laminare, leicht gewellte H_2 -Luft-Flamme von links nach rechts. Im rechten Kanal der Versuchsanordnung wird mit Hilfe einer Berstmembrane und einer Kreisblende, ein Einzelwirbel erzeugt, der sich auf die Flammenfront zubewegt. In Abb. 15a hat die dem Wirbel vorauslaufende Druckwelle die Flammenzone ohne wesentliche Effekte durchquert. Der Wirbel befindet sich zu dieser Zeit am Übergang vom rechten Kanal in die große Versuchskammer. In Abb.

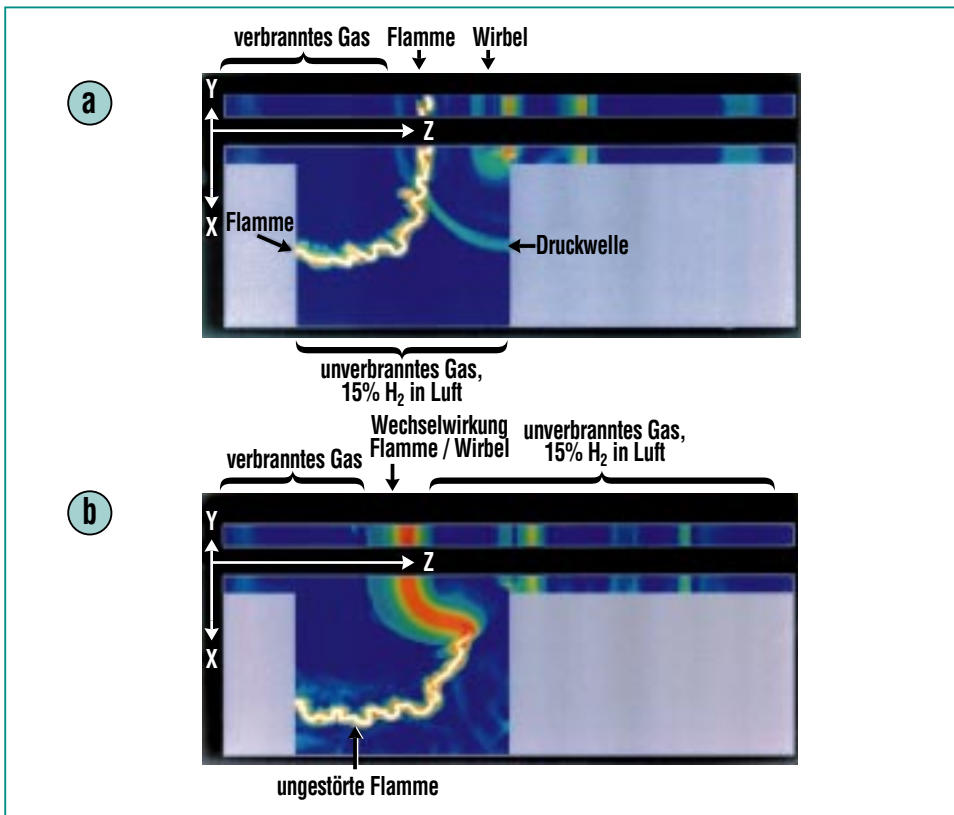


Abb. 15: COM3D Rechnung zur Wechselwirkung einer quasi-laminaren Flammenfront (von links) mit einem Einzelwirbel (von rechts). Dargestellt sind Gradienten der berechneten Gasdichten (numerisches Schlierenbild). a) Vorauslaufende Druckwelle hat Flammenzone ohne wesentliche Effekte durchquert, nur Beugung an Flamme (Grenzfläche heiß/kalt). b) Starke Verbreiterung der Flammenzone im oberen Teil wo der Wirbel die Flamme durchquert. Die COM3D-Ergebnisse decken sich weitgehend mit den experimentellen Daten.

15b hat der Wirbel die Flammenzone erreicht und eine drastische Verbreiterung der Flammenstruktur im oberen Teil bewirkt. Die im Experimente eingesetzten Photodioden zeigten Löschvorgänge an, deren Umfang und Dauer vor allem von der H_2 -Konzentration der H_2 -Luftmischung abhing. Außer diesen Löschphänomenen hat die Rechnung die wesentlichen experimentellen Ergebnisse reproduziert.

Da diese Turbulenz-Chemie-Wechselwirkungen von zentraler Bedeutung für viele wichtige Aspekte von Verbrennungsabläufen sind (Zündung, Beschleunigung, Löschung), sind weitergehende experimentelle Untersuchungen mit verbesserter 2-D-Laserdiagnostik geplant. Nur orts aufgelöste transiente Daten erlauben eine Weiterentwicklung der theoretischen Modelle.

5.2 Füllprozess bei einem H_2 -Gasmotor

In einer zukünftigen Wasserstoffwirtschaft werden Wasserstoffverbrennungsmotoren aller Voraussicht nach eine wichtige Rolle im Transportsektor spielen, weil sie einfacher, billiger und weitaus leichter (pro kW) sind als Brennstoffzellenantriebe. Ein Nachteil von Wasserstoff-Luft-Gemischen besteht allerdings darin, dass sie zur Frühzündung neigen. Dies könnte man mit einer späten Hochdruckinjektion von reinem H_2 nahe am oberen Totpunkt des Kolbens umgehen, wenn in der kurzen zur Verfügung stehenden Zeit bis zur Zündung (einige ms) eine hinreichend homogene H_2 -Luft-Mischung erreicht werden könnte.

Abb. 16 zeigt Ergebnisse einer Testrechnung mit COM3D zum Füllprozess in einem halbkugelförmigen Zylinderkopf. Aus einem Hochdruckreservoir strömt von

rechts reiner Wasserstoff in den Zylinder. Das Druckverhältnis zwischen beiden Volumina war 10:1. Die berechnete H_2 -Verteilung und die Strömungsverhält-

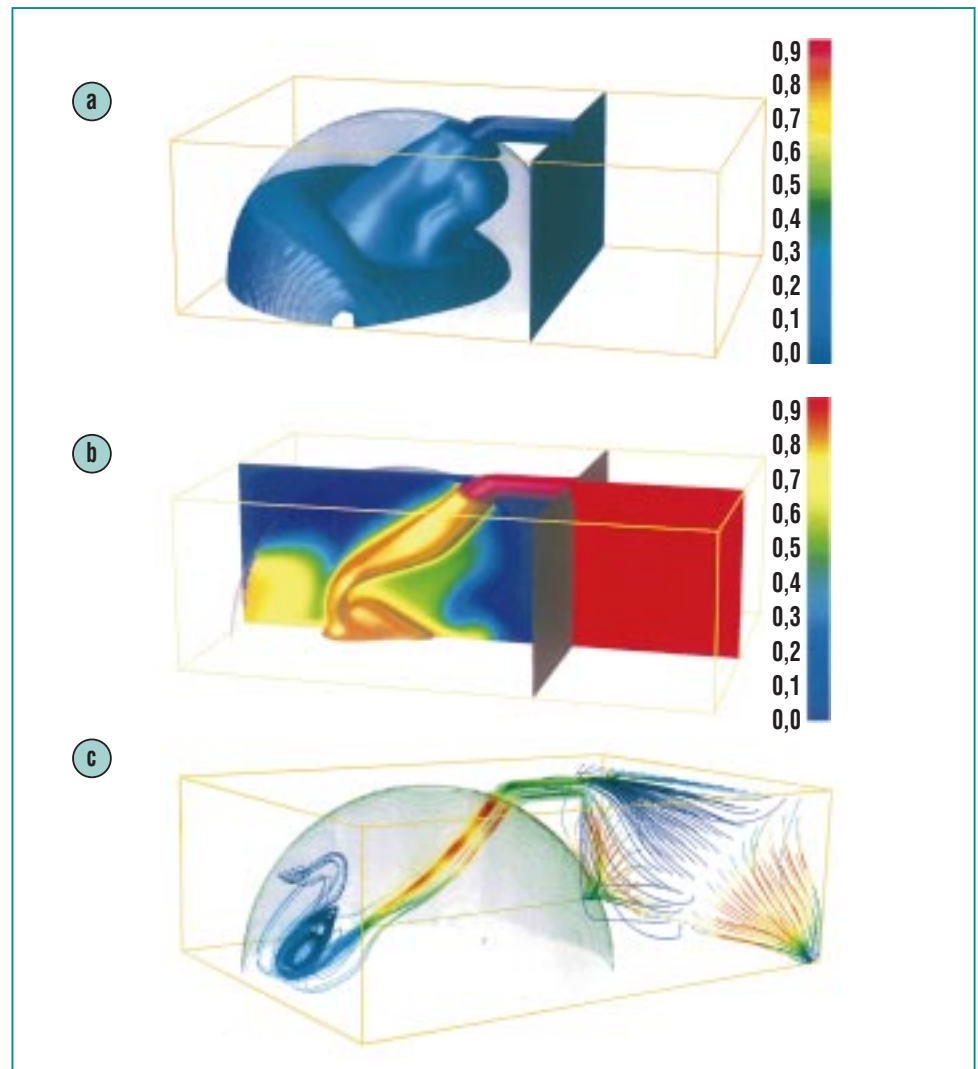


Abb. 16: COM3D-Analyse zum Füllprozess bei einem Wasserstoffgasmotor, Simulationsergebnisse 0,5 ms nach Beginn der H_2 -Injektion von einem Hochdruckreservoir in den halbkugelförmigen Zylinderraum. a) Isofläche im Raum für 10 Vol.% H_2 -Konzentration. b) Isofläche im Raum für 70 Vol.% H_2 , kombiniert mit der örtlich variierenden H_2 -Konzentration in der zentralen vertikalen Schnittebene. Der Füllprozess ist sehr komplex und kann durch Geometrievariationen optimiert werden. c) Darstellung des Strömungsfeldes in Form von Stromlinien, d.h. gedachten Verbindungen der lokalen Geschwindigkeitsvektoren. Farben entsprechen den lokalen Geschwindigkeitswerten (rot ≈ 1400 m/s), links Stromlinien im Zylinderkopf, rechts Stromlinien im H_2 -Hochdruckreservoir.

nisse sind in Abb. 16 etwa 0,5 ms nach Beginn der Injektion dargestellt. Die hohe Schallgeschwindigkeit von Wasserstoff erlaubt hohe Einströmraten, allerdings wird der Mischungsprozess sehr stark von den geometrischen Randbedingungen beeinflusst. Die hier untersuchte asymmetrische Anordnung führt zu ungünstigen lokalen H_2 -Anreicherungen in dem Raumbereich gegenüber

der Eintrittsöffnung. Durch geeignete Wahl von Lage und Form der Einströmöffnung, sowie Kolben- und Zylindergeometrie kann der Vermischungsprozess gesteuert und verbessert werden. Es ist geplant, solche Vermischungsvorgänge durch Freistrahlen in einem Gasmotorvolumen auch experimentell zu untersuchen und mit Hilfe von COM3D Analysen zu optimieren.

5.3 H_2 -Verbrennung in einem Reaktor-sicherheitsbehälter

Nach den Reaktorunfällen in Harrisburg (TMI-2) und Tschernobyl wurden sowohl vom deutschen Gesetzgeber als auch von deutschen und französischen Genehmigungsgremien erhöhte Sicherheitsanforderungen für zukünftige Reaktoren gestellt. Die wesentliche neue Auflage besteht darin, daß selbst im Falle von Kernschmelzunfällen die radiologischen Konsequenzen praktisch auf die Anlage selbst beschränkt bleiben müssen. Dieses erweiterte Sicherheitskonzept erfordert einen mechanistischen Nachweis der Containmentintegrität gegenüber allen physikalisch möglichen Wasserstoff-Verbrennungslasten. Zu diesem Zweck wurden dreidimensionale Simulationsrechnungen für einen zukünftigen Reaktorentwurf durchgeführt. Das Rechengitter umfaßte ca. 2.1 Millionen kartesische Rechenzellen von je $41 \times 41 \times 41 \text{ cm}^3$ Volumen. Im folgenden werden beispielhaft Ergebnisse einer Rechnung erläutert, die im Rahmen von Designstudien zusammen mit Siemens-KWU durchgeführt wurden.

Die Anfangsverteilung von Wasserstoff und Dampf im Reaktorsicherheitsbehälter wurde aus Verteilungsrechnungen mit dem 3D-Fluidodynamikprogramm GASFLOW [13] übernommen. Die Zündung der turbulenten H_2 -Luft-Dampf-Verbrennung erfolgte in dem Pumpenraum, in dem die höchsten H_2 -Konzentrationen vorlagen, etwa auf halber

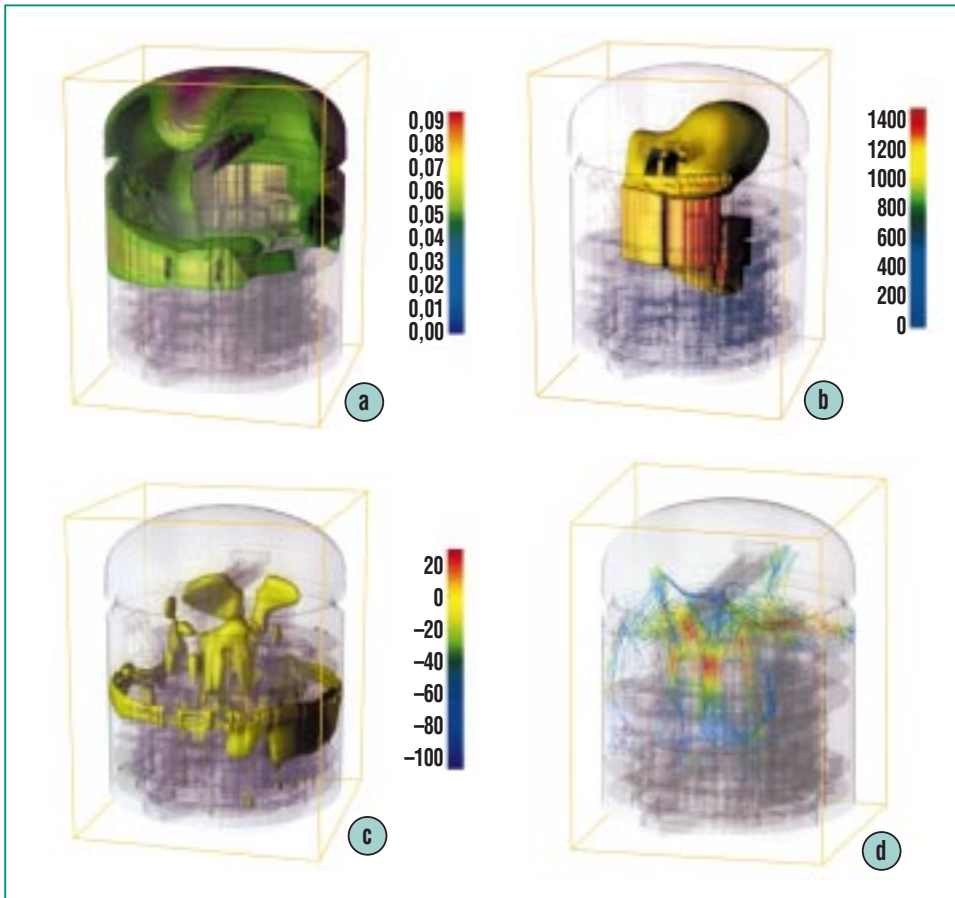


Abb. 17: COM3D-Simulation einer turbulenten Verbrennung in einem Reaktorcontainment, 3D-Darstellung verschiedener Felder, 0,5 s nach Zündung der H_2 -Dampf-Luft Atmosphäre, „Glasmodell“ der Containmentgeometrie mit durchsichtigen Wänden, ca. 2.2 Millionen Rechenzellen. a) Isofläche für 5 Vol.% H_2 im Raum, Ausbrand in Gebäudemitte. b) Isofläche für 1100 °C , momentane Flammenposition in Räumen und Dom. c) Isofläche für 10 m/s Vertikalströmung, Expansion verbrannter Gase in untere Bereiche des Containments. d) Beispiel für Stromlinien im Gebäude, blau = ca. 10 m/s , rot = ca. 40 m/s Gasgeschwindigkeit ($\approx 150 \text{ km/h}$).

Höhe im Containment. Die Rechnung mit der Parallelversion von COM3D benötigte ca. 30 h auf einer SP-2 unter Einsatz von 60 Prozessoren. Die folgenden Abbildungen sollen nur einen generellen Eindruck von den komplexen Abläufen und typischen Resultaten vermitteln. Die Geometrie des Sicherheitsbehälters ist in Form eines Glasmodells dargestellt, um Einblicke in innere Raumbereiche zu gestatten.

Abb. 17a bis d beziehen sich auf einen festen Zeitpunkt, 0,5 s nach Zündung der turbulenten Deflagration. Abb. 17a zeigt die Isofläche im Raum für 5 Vol.% Wasserstoff. Zu dieser Zeit ist der große zentrale Bereich im Containment bereits ausgebrannt. In Abb. 17b zeigt die Isofläche für 1100°C die momentane Position der Flamme, die sich in den Dom des Containments und in einzelne Räume erstreckt. Die nach oben expandierende Flamme verdrängt Gas in die unteren Raumbereiche. In Abb. 17c ist die Fläche gezeigt, auf der das Gas mit 10 m/s nach unten strömt. Es fließt insbesondere über einen Ringspalt zwischen der äußeren Zylinderwand und einem Boden, der etwa auf halber Containmenthöhe liegt. In Abb. 17d sind die komplexen Strömungsverhältnisse mit Hilfe von Stromlinien dargestellt. Lage und Größe von Einbauten, Wänden und offenen Strömungsquerschnitten haben einen großen Einfluß auf die Gasumverteilung während des Brandes, was wiederum auf den Verbrennungsablauf zurückwirkt.

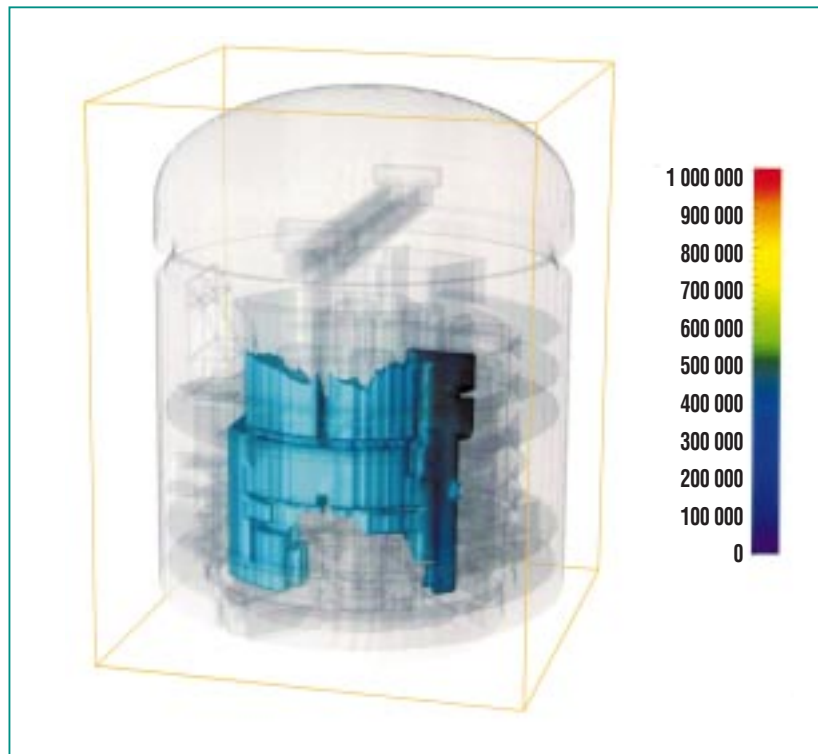


Abb. 18: Containmentwandbereich der während der simulierten turbulenten H₂-Luft-Dampf Verbrennung mit maximal 3 bar belastet wurde. Höhere Drücke traten nur auf inneren Wänden auf. Aus den berechneten dynamischen Drucklasten kann der Strukturresponse untersucht und die Integrität von Containmentwänden ermittelt werden.

Die letztlich interessierende Information sind die entstehenden Drucklasten auf die Wände des Sicherheitsbehälters. Abb. 18 zeigt diejenigen äußeren Wandbereiche in denen irgendwann während des Verbrennungsvorgangs eine maximale Drucklast von 3 bar entstand. Für ca. 200 Punkte auf der gesamten äußeren Containmentfläche wurde in der COM3D-Rechnung auch die vollständige zeitabhängige Drucklast gespeichert. Dadurch sind die notwendigen Daten für eine Analyse des Strukturverhaltens der Containmentwand vorhanden (belastete Fläche, zeitlicher Druckverlauf). Die Auswir-

kungen von dynamischen Drucklasten auf die Auslenkung und Integrität von Strukturen sind komplex. Sie hängen i.A. von dem zeitlichen Verlauf der Drucklast und insbesondere vom Verhältnis der Lastdauer zur Response-Zeit der Struktur ab [14].

6. Zusammenfassung und Ausblick

Am Institut für Kern- und Energietechnik des FZK wurde ein Rechenprogramm zur dreidimensionalen numerischen Simulation turbulenter Verbrennungen von vorgemischten Gasen in komplexen Geometrien entwickelt. Die

verwendeten Modelle für Gasdynamik, Turbulenz und chemische Reaktion wurden beschrieben.

Für die Verifikation der physikalischen und numerischen Modelle waren geeignete experimentelle Daten erforderlich. Dementsprechende Versuche mit wasserstoffhaltigen Testgasen wurden auf mittlerer (12 m) und auf großer Skala (60 m) durchgeführt. Diese neuen Experimente decken einen weiten Bereich von Gemisch- und Turbulenzzuständen ab.

Die physikalischen und numerischen Modelle des COM3D-Codes wurden an speziell ausgerichteten numerischen Testproblemen und den beschriebenen Experimenten überprüft. Ziel war eine systematische und möglichst entkoppelte Verifikation der einzelnen Teilmodelle für Gasdynamik, Thermodynamik, Turbulenz und turbulente Reaktionsrate. Der Gültigkeitsbereich des erweiterten EBU-Reaktionsmodells innerhalb des Borghi-Diagramms und die damit beschreibbaren turbulenten Verbrennungsregimes wurden bestimmt. Innerhalb dieser Grenzen stellt der COM3D-Code verifizierte Modelle zur Verfügung, die auch im Hinblick auf numerischen Aufwand und Genauigkeit untereinander ausgewogen sind.

Die breiten Anwendungsmöglichkeiten des Programms wurden an drei Beispielen demonstriert: einer Grundlagenuntersuchung, zur Wechselwirkung von Flamme und Turbulenz einer kleinskaligen Motorsimulation und einer großskaligen Reaktorcontainmentanalyse.

Die Weiterentwicklung des COM3D-Programms hat zwei Zielrichtungen

- Ausdehnung der Reaktionsmodellierung auf bisher nicht abgedeckte Bereiche der vorgemischten Verbrennung ($Da < 10$). Dazu sind derzeit neue multidimensionale β -PDF-Ansätze in der Entwicklung. Solche PDF-Methoden würden es auch erlauben die Verbrennung von nicht oder nur teilweise vorgemischten Systemen mit Konzentrationsgradienten, die ebenfalls von großer praktischer Bedeutung sind, numerisch zu simulieren.
- Verbesserung der bisher eingesetzten isotropen 2-Gleichungsmodelle für die Turbulenz unter Ausnutzung der zu erwartenden Zunahme der Rechnerleistung. Für die hier untersuchten stark instationären und anisotropen 3D-Strömungen sind Turbulenzmodelle vom LES-Typ (Large

Eddy Simulation) grundsätzlich geeigneter. Hierbei werden die großen, nicht-isotropen Wirbel direkt numerisch simuliert und die Wirbel unterhalb einer bestimmten Größe über ein "Subgrid"-Modell beschrieben. Je nach Problemgröße und verfügbarer Rechnerleistung kann die Lage des Filters angepaßt werden.

Die Verifikation solcher weiterführenden Turbulenz- und Reaktionsmodelle erfordert neue hochauflösende Experimente mit Lasersdiagnostik, die lokale und mehrdimensionale Datenfelder für Geschwindigkeiten, PDF's, Turbulenzintensitäten, Flammenfrontposition und Brennraten liefern. Der Aufbau von entsprechenden Experimenten mit Lasersdiagnostik zur Verteilung und Verbrennung reaktiver Gemische ist derzeit in Vorbereitung.

Anhang: Definitionen

a) Abbildung 2

ρ = Gesamtdichte
 u_j = Geschwindigkeitskomp.
 g_i = Schwerkraftkompon.
 p_{xi} = Druckgradient
 M_{ij} = Viskositätstensor
 e = Gesamtenergie
 p = Druck
 μ_{tur} = turbulente Viskosität
 C_h = Konstante für Enthalpietransport
 ε = Dissipationsrate
 f_α = Massenbruch Spezies α
 $\tilde{\omega}_\alpha$ = mittlere Reaktionsrate Spezies α
 C_i = Modellkonstante für Transportvariable i
 μ_α = Molekulargewicht von Spezies α
 h_α = Enthalpie von Spezies α
 Δh_α^0 = Bildungsenthalpie Spezies α
 R = Universelle Gaskonstante
 T = Temperatur

k = turbulente kinetische Energie
 $\dot{\omega}_\alpha$ = Reaktionsrate für Spezies α
 F = Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion

b) Definitionen im Text

u' = turbulente Schwankungsgeschwindigkeit der Makrowirbel
 L_t = turbulentes Längenmaß
 Re_t = turbulente Reynolds-Zahl
 S_L = laminare Flammengeschwindigkeit
 δ_L = laminare Flammendicke
 ν = kinematische Viskosität
 l_k = Längenmaß der kleinsten (Kolmogorov-)Wirbel
 u'_k = Schwankungsgeschwindigkeit der Kolmogorov -Wirbel
 Ka = turbulente Karlovitz-Zahl
 Da = turbulente Damköhler-Zahl

Literatur

- [1] K. Görner, *Technische Verbrennungssysteme. Grundlagen, Modellbildung, Simulation*, Springer Verlag (1991).
- [2] B.E. Launder, D.B. Spalding, *Computer methods in Appl. Mech. and Eng.*, 3:269-289, 1974.
- [3] H. Naji, R. Said, R. Borghi, *Towards a general turbulent combustion model for spark ignition engines*. In *Int. Congress and Explosion*, number 890672 in SAE Technical Paper Series, pages 1-12, Detroit, Michigan, Feb. 27 – Mar.3 1989.
- [4] R. Said, R. Borghi, *A simulation with a cellular automation for turbulent combustion modeling*. In *22nd Symp. (Int.) on Combust.*, pages 569-577, University of Washington-Seattle, USA, 1988.
- [5] R. Redlinger, *Approximations of enthalpy and specific heat for H_2 , O_2 , N_2 , H_2O* . Unpublished, 1996.
- [6] W. Breitung, A. Kotchourko, *Nachrichten – FZK, Jahrgang 28, Heft 2-3/96*, S. 175-191.
- [7] S.B. Dorofeev, V.P. Sidorov, A.E. Dvoishnikov, A.V. Zhernov, S.M. Velmakin, *Large scale hydrogen-air fast turbulent deflagration experiments in the RUT facility*, *Endbericht Kurchatov Institut an FZK* (Febr. 1994).
- [8] S.B. Dorofeev, V.O. Sidorov, A. Dvoishnikov, A. Denkevits, A. Efimenko, A. Lelyakin, *Large scale hydrogen-air-steam DDT experiments in the RUT facility. Test series 1996. Report RRC KI 80-05/16, Russian Research Centre "Kurchatov Institute" (March 1997)*.
- [9] S.B. Dorofeev, V.P. Sidorov, W. Breitung, A.S. Kotchourko, *Large-scale combustion tests in the RUT facility: Experimental study, numerical simulations and analysis on turbulent deflagrations and DDT*, *14th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMIRT-14)*, Lyon, France (August 17-22, 1997), Vol. 10, p. 275-282.

-
-
- [10] W.C. Reynolds,
The element potential method for chemical equilibrium analysis: Implementation in the interactive program STANJAN version 3. Report, Dept. of Mechanical Engineering, Stanford University, Palo Alto, CA, USA, January 1986.
- [11] A. Kotchourko, W. Breitung, A. Vesper, S.B. Dorofeev,
Tube experiments and numerical simulation on turbulent hydrogen-air combustion. In Twenty First Symp. (Int.) on Shock Waves, pages 3220.1-3220.6, Great Keppel Island, Australia, 1997.
- [12] I.D. Matuskov, M.S. Kuznetsov, V.I. Alekseev, S.B. Dorofeev, A.S. Kotchourko,
Experimental study on the flame-vortex interaction. Endbericht an FZK, Russian Research Centre "Kurchatov Institute", Nov. 1995.
- [13] J.R. Travis, P. Royle, R. Redlinger, G. Necker, J.W. Spore, K.L. Lam, T.L. Wilson, B.D. Nichols, C. Müller,
Bericht FZKA-5994, LA-13357-M (1997).
- [14] W. Breitung, R. Redlinger,
Nuclear Technology, Vol 111 (Sept. 1995), p. 420 – 425.

Numerische Simulation von Gasdetonationen in komplexen 3D-Geometrien

R. Redlinger, IKET

Einleitung

Eines der Hauptrisiken, das mit der Verwendung von Wasserstoff als alternativer Energiequelle oder als Rohstoff in der chemischen Industrie verbunden ist, liegt in der leichten Entzündbarkeit von Wasserstoff in Luft und der damit gegebenen Möglichkeit einer Verbrennung oder sogar Explosion. Erinnert sei in diesem Zusammenhang an so spektakuläre Ereignisse wie den Absturz des Hindenburg-Zeppeleins in Lakehurst 1937 oder das Unglück des Challenger Space Shuttles im Jahr 1986.

Bei schweren Unfällen in Kernkraftwerken hätte eine Wasserstoff-Luft-Verbrennung mit Übergang in eine Detonation und daraus folgender Zerstörung des Reaktorgebäudes sehr weitreichende Schadenswirkungen in der Umgebung. Obwohl die Wahrscheinlichkeit derartiger Ereignisse wegen der mehrfach vorhandenen Sicherheitssysteme sehr gering ist, wird doch darüber nachgedacht, wie auch solche etwaige Schäden vermindert werden könnten. Ausgedehnte Studien haben gezeigt, daß es durchaus möglich ist, ein Reaktorgebäude zu bauen, das derartigen Belastungen standhält. Die Schäden wären damit auf die Reaktoranlage selbst beschränkt [1].

Für die Auslegung eines derartigen Reaktorgebäudes muss man insbesondere die maximal auftretenden Drucklasten als Folge von Wasserstoff-Luft-Verbrennungen kennen. Detonationen liefern für diese Lasten eine obere Schranke, und der am IKET (früher INR) für diesbezügliche Modellrech-

nungen verwendete Rechencode DET3D soll im folgenden vorgestellt werden.

Beschreibung des Rechencodes

Da Detonationen sehr schnelle Vorgänge sind – die übliche Geschwindigkeit der Detonationswelle bei Wasserstoff-Luft-Detonationen bewegt sich im Bereich von 1500 m/s – ist es bei der physikalischen Modellbildung nicht nötig, Effekte wie molekulare Diffusion, Turbulenz, Strahlung oder Wärmeleitung in Betracht zu ziehen. Es genügt, die Eulergleichungen der Gasdynamik für eine Mischung von N idealen, chemisch reagierenden Gasen zu lösen. Bezeichnet ρ^k die Dichte der k -ten Komponente und $\rho = \sum_k \rho^k$ die Gesamtdichte, p den Gesamtdruck, $u = (u_1, u_2, u_3)$ die Geschwindigkeit in 3 Raumdimensionen und $e = 1/2 u^2 + \varepsilon$ die totale spezifische Energie mit ε als spezifischer innerer Energie, so lauten diese Gleichungen in cartesischen Koordinaten x_i wie folgt ($k = 1, 2, \dots, N$; untere Indizes t bzw. x_j bedeuten Ableitung nach der Zeit bzw. nach der räumlichen Koordinate x_j ; über j wird jeweils von 1 bis 3 summiert)

$$\rho_t^k + (\rho^k u_j)_{x_j} = S^k$$

Massenerhaltung

$$(\rho u_i)_t + (\rho u_i u_j)_{x_j} + p_{x_i} = 0$$

Impulserhaltung ($i = 1, 2, 3$)

$$(\rho e)_t + [(\rho e + p) u_j]_{x_j} = 0$$

Energieerhaltung

Der Quellterm S^k in der Gleichung der Massenerhaltung modelliert dabei Änderungen der Gaskomponentendichten, die

von den chemischen Reaktionen herrühren. Im Code DET3D stellen die Terme S^k die Summen von elementaren chemischen Reaktionen dar, deren Reaktionsgeschwindigkeit durch ein Arrhenius-Gesetz beschrieben wird. Sowohl die Anzahl N der Gaskomponenten als auch die Form und Anzahl der elementaren Reaktionen (inklusive der Arrhenius-Konstanten) kann vom Benutzer des Codes frei gewählt werden. Die thermodynamischen Eigenschaften der einzelnen Gase, d.h. die spezifischen inneren Energien und die spezifischen Wärmen, werden als Polynome der Temperatur angegeben, die durch Interpolation der JANAF-Meßdaten [2] erhalten wurden.

Als numerischen Löser benützt DET3D ein modernes Verfahren, das Stoßvorgänge automatisch modelliert („shock capturing“), siehe etwa [3]. Das implementierte Verfahren ist explizit und benützt finite Differenzen. Der Benutzer hat die Wahl zwischen Lösern 1. und 2. Ordnung, doch hat es sich gezeigt, daß für Detonationsrechnungen die Variante 1. Ordnung ausreichend gute Ergebnisse liefert und deshalb aus Rechenzeitgründen vorzuziehen ist.

Validierung des Codes durch Vergleich mit bekannten analytischen Lösungen

Eines der konzeptionell einfachsten, aber für viele Zwecke ausreichenden Modelle zur Beschreibung einer Detonationswelle beruht auf der Annahme, daß die Detonationsfront aus einer sehr dünnen Diskontinuität besteht, in der die exotherme chemische

Reaktion vollständig abläuft und über die hinweg die bekannten Erhaltungssätze für Stöße mit Energiezufuhr gelten. Bei der Detonationswelle kann man dann im wesentlichen 4 Zonen unterscheiden, wie in Abb. 1 dargestellt [4].

Diese Abbildung zeigt zum Vergleich auch noch das entsprechende, mit DET3D berechnete Druckprofil. Man sieht, daß beide Profile recht gut miteinander übereinstimmen.

Es sei an dieser Stelle bemerkt, daß für Sicherheitsanalysen insbesondere der sogenannte Druckimpuls, d.h. das Integral des Überdruckes über die Zeit, von Belang ist [5, 6]. Eine genauere numerische Auflösung der sehr dünnen Detonationsfront ist meist nicht notwendig, da das Integral über die Detonationsfront norma-

lerweise sehr klein wird. Es genügt, wenn der Zustand des Gases direkt hinter der Front (Chapman-Jouguet-Punkt, siehe Abb. 1) vom Code hinreichend genau reproduziert wird.

Validierung des Codes durch Vergleich mit Experimenten

Es wurden drei Serien von Experimenten mit Wasserstoff-Luft-Detonationen durchgeführt. Ziel war es dabei, Messdaten für einen hinreichend großen Bereich von Geometrien zu erhalten.

Ballon-Experimente

In einer ersten, am Fraunhofer-Institut in Berghausen durchgeführten Testreihe [7] wurde ein halbkugelförmiger, mit verschiedenen Wasserstoff-Luft-Gemischen gefüllter Ballon mit einem

Volumen von ca. 50 m³ zentral gezündet. Abb. 2 zeigt die typische Ausbreitung der Detonationswelle für einen Versuch mit 29% Wasserstoff und 71% Luft.

In Abb. 3 sind die gemessenen und berechneten Druckverläufe an einem Messpunkt innerhalb (Abb. 3a) und außerhalb (Abb. 3b) des Ballons geplottet.

Man beachte, daß die zweite Druckspitze in Abb. 3a von der Reflektion der Welle an der Mediengrenze herrührt (Ballonhülle, außerhalb befindet sich Luft).

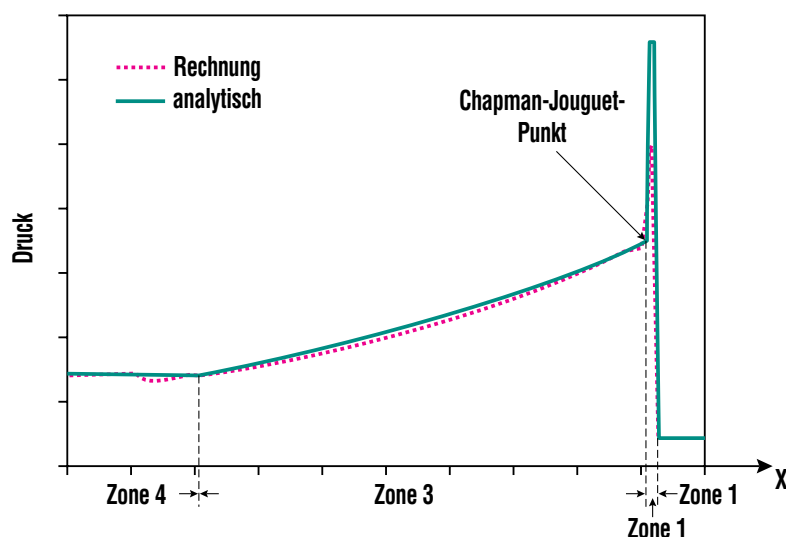


Abb. 1: Druckprofil einer nach rechts laufenden Detonationswelle.
Zone 1: Unverbranntes Gasgemisch vor der Welle,
Zone 2: Stoß mit exothermer chemischer Reaktion (Detonationsfront),
Zone 3: Expansionswelle hinter der Front, in der das Gas zur Ruhe kommt,
Zone 4: Ruhendes, verbranntes Gasgemisch hinter der Welle.

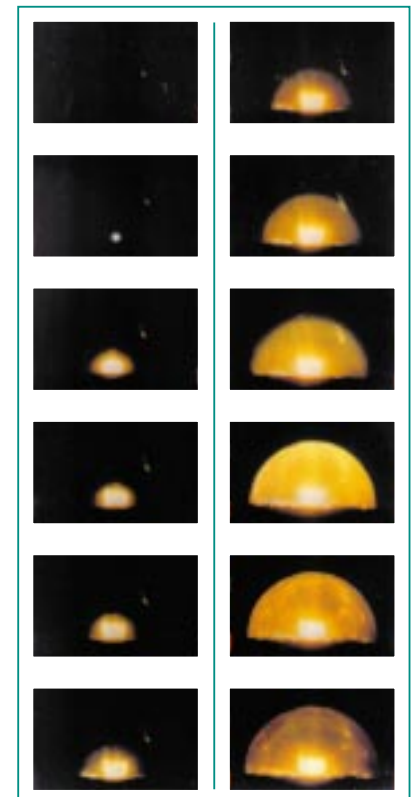


Abb. 2: Wasserstoff-Luft-Detonation in einem halbkugelförmigen Ballon von ca. 6 m Durchmesser mit zentraler Zündung Zeitschrittweite 0.4 ms, Geschwindigkeit der Detonationsfront im Balloninnern ist ca. 1960 m/s.

FZK-Rohr

Experimente mit verschiedenen Gasgemischen und Geometrien (internen Hindernissen) wurden in einem Rohr von 12 m Länge und 35 cm Innendurchmesser durchgeführt, siehe Abb. 4.

Ein typischer Versuchsaufbau mit einem 3-dimensionalen Hindernis (schräg abgeschnittener Zylinder) am rechten Rohrende wird in Abb. 5 gezeigt. Die Zündung erfolgt am linken Ende des Rohres.

Die zugehörigen gemessenen und berechneten Druckdaten für einen Punkt 4.25 m vom linken

Ende sind in Abb. 6 geplottet. Man sieht, daß die eigentliche Detonationswelle (erste Druckspitze + Expansion) sowie die ersten Reflektionen dieser Welle an den Rohrenden von der Rechnung sehr gut wiedergegeben werden. Mit zunehmender Dauer wird die Stärke und Geschwindigkeit der reflektierten Stoßwellen vom Code aber etwas überschätzt. Vermutlich liegt das daran, daß in der Rechnung keine Wärmeverluste berücksichtigt werden.

Die zwei Rechnungen in Abb. 6 unterscheiden sich durch die verwendete Reaktionskinetik: die er-

ste Rechnung verwendet 4 Gas-komponenten (H_2 , O_2 , N_2 und Wasserdampf) mit der simplen Kinetik $2H_2 + O_2 \rightarrow 2H_2O$, die zweite dagegen 7 Komponenten (zusätzlich H , O und OH) und die komplexe Kinetik $H_2 \rightarrow 2H$, $H + O_2 \rightarrow OH + O$, $O + H_2 \rightarrow OH + H$, $OH + H_2 \rightarrow H_2O + H$, $H + OH + M \rightarrow H_2O + M$, mit M als Katalysator (z.B. H_2O).

Wie zu erwarten liefert die zweite Rechnung die etwas besseren Ergebnisse, doch auch die Übereinstimmung der ersten Rechnung mit den Messdaten ist durchaus zufriedenstellend. An-

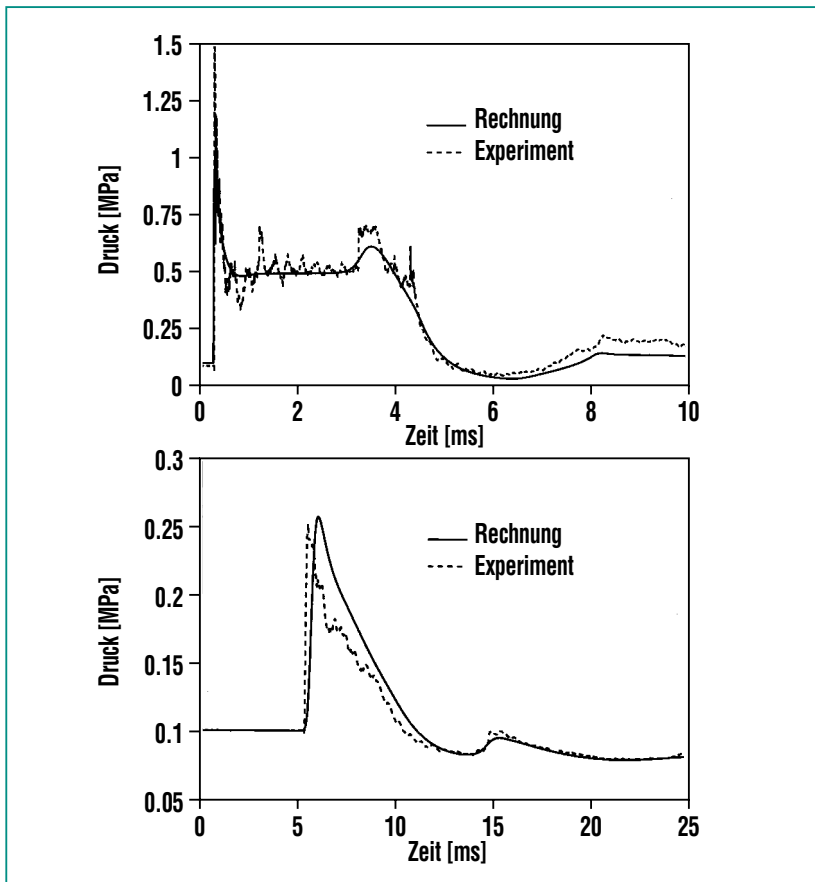


Abb. 3: a) Druckverlauf innerhalb des Ballons, Entfernung zum Zündpunkt 0.75 m; b) Druckverlauf außerhalb des Ballons, Entfernung zum Zündpunkt 6.25 m.



Abb. 4: Das FZK-Rohr zur Untersuchung der Ausbreitung von Detonationswellen.

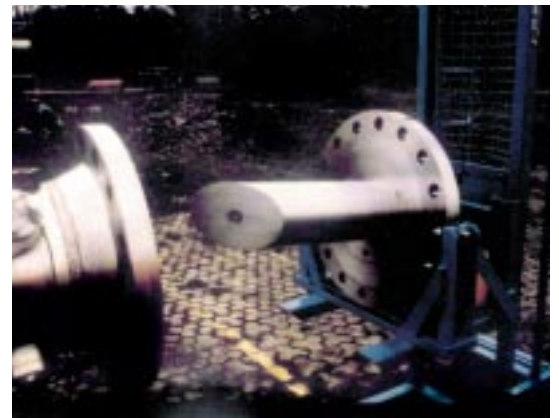


Abb. 5: Eingebautes Target im FZK-Rohr.

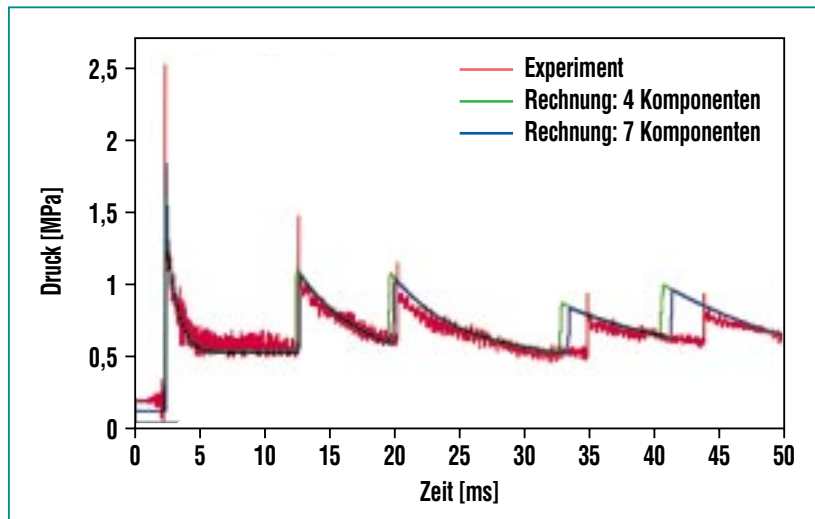


Abb. 6: Druckverläufe im FZK-Rohr 4.25 m vom Zündort. Der Chapman-Jouguet-Druck ist 1.59 MPa.

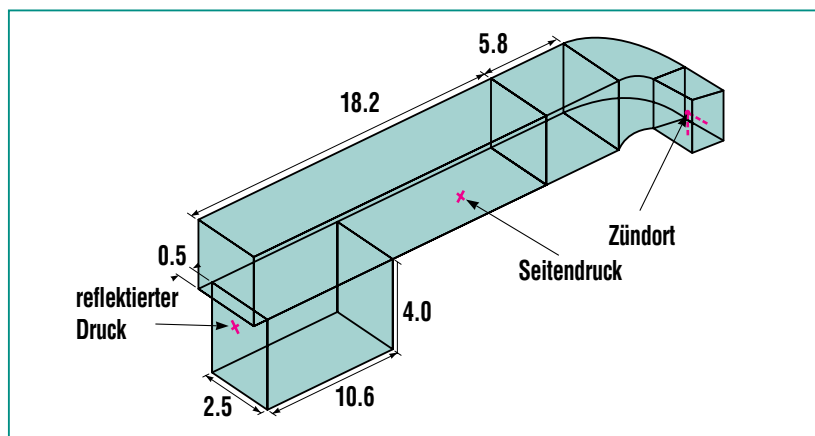


Abb. 7: Skizze der RUT-Anlage, Dimensionen in m.

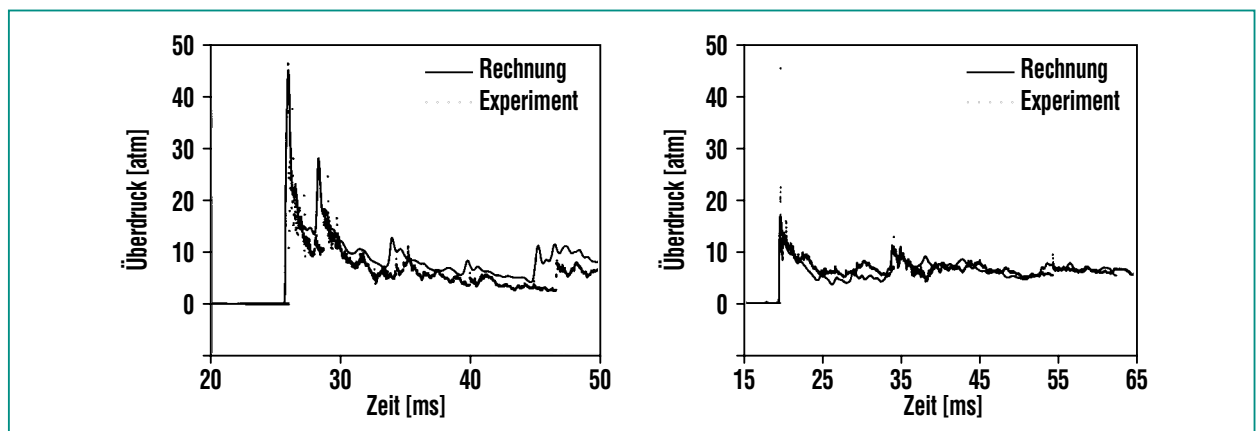


Abb. 8: a) Druckverlauf an einer reflektierenden Wand der RUT-Anlage; b) Druckverlauf an einer Seitenwand der RUT-Anlage.

gesichts einer erheblich angestiegenen Rechenzeit im zweiten Fall wird man sich deshalb bei Rechnungen für Reaktor-Containments auf die einfachere Kinetik beschränken können.

RUT-Anlage

Sehr viele Experimente in großem Maßstab (maximales Volumen ca. 300 m³) und unter komplexen geometrischen Verhältnissen wurden in der RUT-Anlage nahe Moskau durchgeführt. Abb. 7 zeigt eine Skizze dieser Anlage.

Wie bei den beiden ersten Testreihen ergeben sich gute Übereinstimmungen zwischen Messungen und Rechnungen. Man beachte hierzu die Abb. 8a und b, in denen zwei typische Druckverläufe für einen Versuch mit 25 % Wasserstoff und 75 % Luft geplotet sind; Abb. 8a zeigt den Druckverlauf an einer normal reflektierenden und Abb. 8b den an einer Seitenwand der RUT-Anlage. Die genauen Messpositionen und der Zündort können Abb. 7 entnommen werden.

Fall	Druck	Temperatur		H ₂		Wasserdampf		H ₂ (Gesamtmasse)
		Dom	sonst	Dom	sonst	Dom	sonst	
A	3 bar	100 °C	40 °C	20%	5%	40%	50%	1220 kg
B	3 bar	120 °C	40 °C	20%	5%	53.3%	2.4%	1194 kg
C	1.23 bar	47 °C		vertikal von 13% auf 7% abnehmend		0%		690 kg

Tab. 1: Typische Anfangszustände der Containment-Atmosphäre bestehend aus Wasserstoff, Luft und Wasserdampf

Lokale Detonationsrechnungen für ein Reaktorcontainment

Der Code DET3D wurde dazu benutzt, Druckverteilungen zu berechnen, die bei einer postulierten Wasserstoff-Luft-Detonation das Reaktor-Containment belasten können [5]. Dazu wurde ein 3-dimensionales Computer-Modell eines solchen Containments erstellt, bestehend aus einem regulären cartesischen Gitter mit ca. 1 Million Zellen von 40 cm Seitenlänge und mit einem Gesamtvolumen von ca. 56000 m³. Alle Rechnungen wurden auf IBM RISC/6000 Workstations durchgeführt.

In Tab. 1 sind mit den Fällen A, B und C einige typische Anfangsbedingungen aufgelistet. Abb. 9 zeigt den Verlauf einer Detonation für Fall A: Die Zündung erfolgt

links oben an der unteren Domgrenze (siehe Abb. 10): oberhalb dieser Grenze befindet sich das detonierbare, wasserstoffreiche Gasgemisch, unterhalb das magerere Gemisch.

Die Bildfolge zeigt deutlich die schnelle, kugelförmige Ausbreitung der Detonationswelle im Dom (10 bis 30 ms) und die langsamere, stoßinduzierte Verbrennungswelle nach unten in das übrige Containment. Nach ca. 30 ms hat die Detonationswelle den gesamten Dom durchlaufen, und das heiße, verbrannte Gas mischt sich nun durch Konvektion mit dem übrigen mageren Gemisch und führt auch hier zu Verbrennungsvorgängen. Die Schnappschüsse für 40, 60 und 120 ms geben einen Eindruck von der komplexen Struktur der reflektierten und miteinander

wechselwirkenden Stoß- und Verbrennungswellen.

Es besteht bei DET3D die Möglichkeit, vor Beginn der Rechnung eine beliebige Anzahl von „Druckaufnehmern“ zu spezifizieren, d.h. von Punkten, in denen relevante Daten wie Druck, Temperatur oder Gaszusammensetzung als Funktion der Zeit aufgezeichnet werden. Besonders interessant für die Belastung eines Containments sind die Drücke an der Containment-Wand.

In Abb. 10 sind einige dieser Drücke für die Fälle A, B und C geplottet.

Neben den Fällen A-C wurden noch sehr viele weitere Fälle untersucht, die sich hinsichtlich Anfangszustand des Gases und Zündort unterscheiden und damit ein breites Spektrum von möglichen Unfallszenarien abdecken.

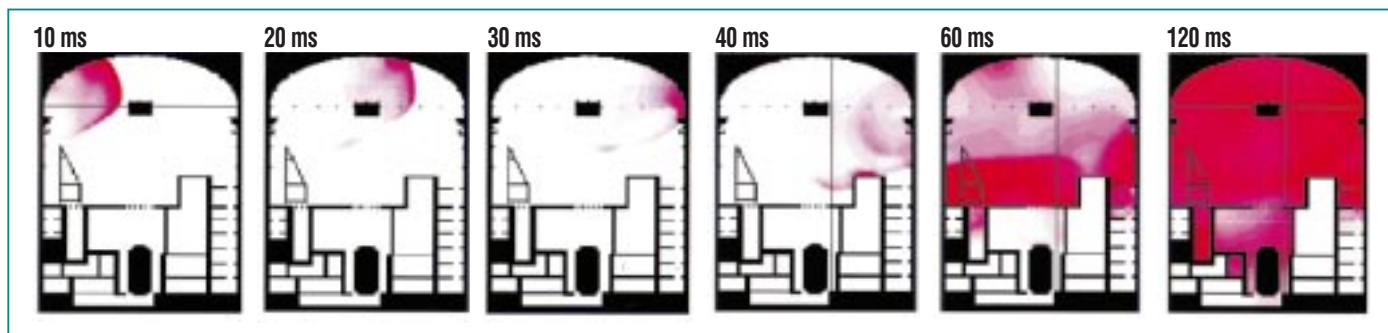


Abb. 9: Numerische Simulation einer Detonation in einem Containment. Anfangsbedingung gemäß Fall A; Zündung links oben an der unteren Domgrenze.

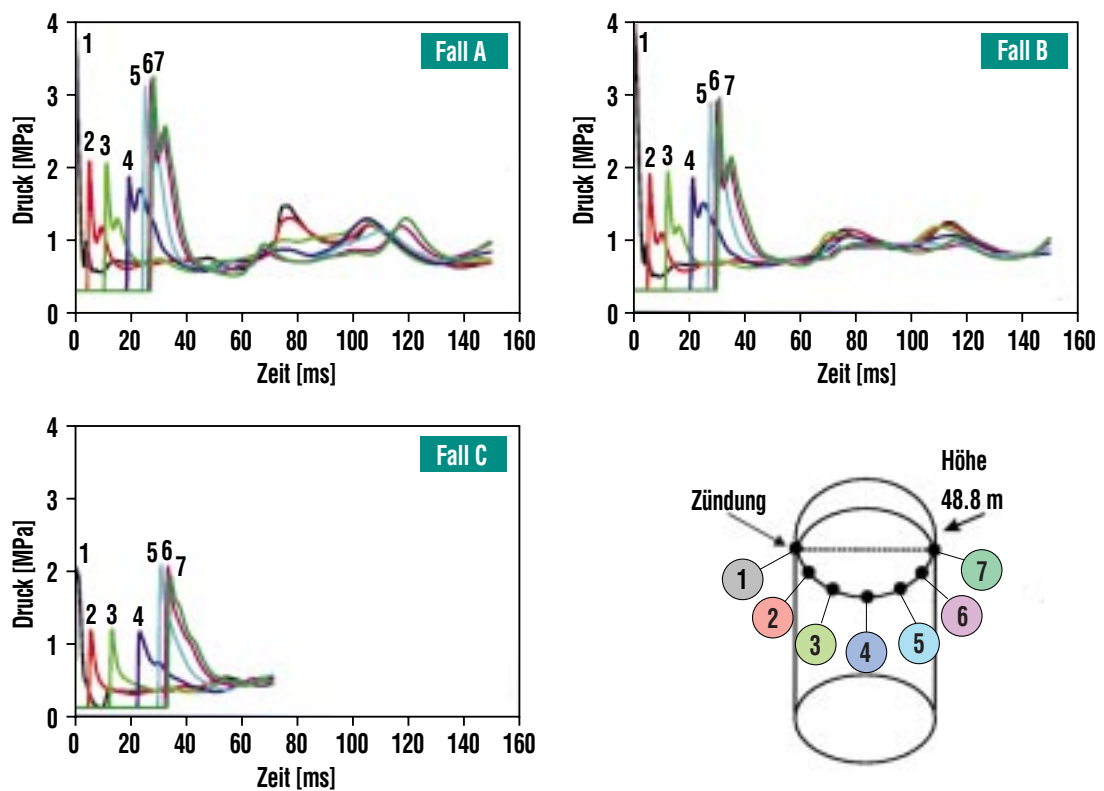


Abb. 10: Druckverläufe am unteren Rand des Doms.

Die zu Anfang im Containment enthaltene Menge an Wasserstoff variierte dabei zwischen ca. 700 und 1850 kg. Die berechneten Drücke stellen eine konservative Obergrenze dar, die später durch feinere physikalische Modelle und Berücksichtigung aktiver Gegenmaß nahmen wie etwa Zünder oder Rekombinatoren reduziert werden kann. Eine wichtige Folgerung aus den DET3D-Rechnungen kann aber schon heute gezogen werden: Der Bau eines Beton-Containments, das allen von Wasserstoff-Luft-Verbrennungen herrührenden Drucklasten standhält, liegt bautechnisch im Bereich des Möglichen [8]. (Dass über die Vertret-

barkeit der dadurch entstehenden Kosten die Meinungen auseinandergehen, ist eine andere Frage.)

Zusammenfassung

Der im FZK entwickelte explizite, 3-dimensionale, finite Differenzencode DET3D ist ein flexibles Werkzeug zur numerischen Simulation von Detonationen in Gasströmungen. Sowohl die Anzahl der Gaskomponenten als auch das chemische Reaktionsschema können vom Benutzer frei vorgegeben werden. Der Code wurde durch Vergleich mit analytisch bekannten Lösungen und mit einer großen Anzahl von

Experimenten, die einen weiten Bereich von Längenskalen und Geometrien abdecken, validiert.

In den letzten Jahren wurde DET3D dazu benützt, Wasserstoff-Luft-Dampf-Detonationen in einem komplexen Modell-Reaktorcontainment zu simulieren. Die berechneten Lasten liefern eine Datenbasis für Studien zu detonationssicheren Containmentstrukturen.

Literatur

- [1] H.H. Hennies, G. Keßler, J. Eibl, *Atomwirtschaft* 37 (1992), 238-247
- [2] JANAF Thermodynamical Tables, *J. Phys. and Chem. Ref. Data* 14 (1985), Supplement
- [3] A. Harten, P.D. Lax, B. van Leer, *SIAM Review* 25 (1983), 35-62
- [4] G. Taylor, *Proc. Royal Soc. London Ser. A* 200 (1950), 235-247
- [5] W. Breitung, R. Redlinger, *Kerntechnik* 59 (1994), 162-170
- [6] W. Breitung, R. Redlinger, *Nuclear Technology* 111 (1995), 420-425
- [7] H. Pförtner, *Ausbreitungsfunktionen detonierender Wasserstoff-Luft-Gemische*, Fraunhofer-Institut für Chemische Technologie, FhG-Projekt Nr. 102 555, Pfingsttal 1991
- [8] J. Eibl, *Zur bautechnischen Machbarkeit eines alternativen Containments für Druckwasserreaktoren – Stufe 3*, Karlsruhe 1993